

# Contrôle tolérant aux fautes en ligne d'une pile à combustible de type PEM. Contribution à la gestion de l'eau

Carole Lebreton

### ► To cite this version:

Carole Lebreton. Contrôle tolérant aux fautes en ligne d'une pile à combustible de type PEM. Contribution à la gestion de l'eau. Chimie-Physique [physics.chem-ph]. Université de la Réunion, 2015. Français. NNT : 2015LARE0023 . tel-01279070

### HAL Id: tel-01279070 https://theses.hal.science/tel-01279070

Submitted on 25 Feb 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.



# École Doctorale de Science Technologie et Santé de l'Université de La Réunion nº 542

### THÈSE DE DOCTORAT

Pour obtenir le grade de docteur délivré par :

# l'Université de La Réunion

Discipline : Energétique et Automatique

présentée par

Carole LEBRETON

### Contrôle Tolérant aux Fautes en ligne d'une Pile à Combustible de type PEM Contribution à la gestion de l'eau

dirigée par Michel BENNE

Soutenue le 4 décembre 2015 devant le jury composé de :

Pr. Bruno Auvity	Université de Nantes	rapporteur
Pr. Daniel HISSEL	Université de Franche-Comté	rapporteur
Dr. Sébastien Rosini	CEA	examinateur
Pr. Jean-Pierre Chabriat	Université de La Réunion	président
Pr. Brigitte GRONDIN-PEREZ	Université de La Réunion	co-directrice
Dr. Michel Benne	Université de La Réunion	directeur

Laboratoire Electronique, Energétique et Procédés EA4079 15 Av. René Cassin, CS 92003 97744 Saint Denis Cedex 9 Ecole Doctorale de Sciences Technologies et Santé 15 Av. René Cassin, CS 92003 97744 Saint Denis Cedex 9

Cette thèse est dédiée à mes filleuls, Alex et Coralie.

"A vaincre sans péril, on triomphe sans gloire" Le Cid, de Corneille

### Remerciements

#### Aux membres du jury

Je tiens à remercier le Professeur Jean-Pierre CHABRIAT d'avoir accepté de présider ce jury de thèse. Je remercie aussi les professeurs Daniel HISSEL et Bruno AUVITY d'avoir accepté de rapporter ma thèse. Les rapports que vous avez produits sont jalonnés de remarques enrichissantes qui ont permis un perfectionnement de mon travail. Enfin, je remercie aussi le Docteur Sébastien ROSINI d'avoir examiné mes travaux.

Un travail de thèse, est un travail d'équipe ! Une grande équipe composée de son équipe de recherche, du personnel administratif et des techniciens de recherche. Un thésard a besoin de chaque élément de cette équipe pour que sa thèse soit conduite dans de bonnes conditions, et j'ai trouvé au  $LE^2P$  une équipe formidable.

#### A mes encadrants

Je le dis à qui veut bien l'entendre : mon équipe encadrante a été formidable et bienveillante !

Je remercie chaleureusement mon directeur de thèse Michel BENNE pour sa bonne humeur, ses conseils avisés, ses corrections grammaticales... et son sens de l'humour!

Je remercie Brigitte GRONDIN-PEREZ, ma co-directrice, pour ses conseils pour le travail bien sûr mais surtout pour son sens de l'écoute et sa patience : et oui en thèse nous sommes encore parfois de grands enfants, et avons besoin d'encouragements !

Je tiens à remercier Cédric DAMOUR, pour son encadrement dynamique, pour sa compagnie pendant les tests, ses programmes qui fonctionnent toujours... et surtout pour sa bonne humeur à toute épreuve et son éternel optimisme !

Je remercie Jean-Jacques KADJO, notre expert en cœur de pile, pour ses analyses avisées, son aide pour l'orientation de ces travaux et sa disponibilité.

### A l'équipe du $LE^2P$

Je remercie Patrick JEANTY, ingénieur de recherche mais pas que! Même sur tous les fronts en même temps, tu as su rester disponible pour m'aider quand j'en avais besoin, même pour les soucis matériels. Aussi à l'écoute de mes lubies, comme les petits déjeuners doctorants, les doléances à propos de la vie du laboratoire et des doctorants... Merci à la souriante Kelly GRONDIN d'ANNA qui illumine les journées parfois un peu triste dans un laboratoire de recherche. Tu es le rayon de soleil du troisième étage avec ta patience et ta bienveillance. Tu as aussi un sacré sens de l'humour, alors merci pour les fous rires dans les couloirs, les petits commérages... qui ont rendu ces trois années vraiment géniales.

Cette thèse comprend une partie expérimentale, et à l'ombre des résultats que j'ai pu présenter pendant ces trois ans, se cachent des mains expertes, qui ont mise en place, fabriqué, réparé, secouru, amélioré et plus encore. Parmi ces gens que l'on ne remercie jamais assez, il y a Christian BROUAT et Yanis HOARAU, les techniciens recherche et enseignement.

Merci à vous deux, toujours à l'écoute et prêt à mettre en œuvre nos désirs, il faut l'avouer, parfois un peu farfelus. Alors merci mille fois pour tout ce que vous faites !

Je remercie tous mes collègues, avec qui j'ai partagé un bureau, un repas, un café, un petit déj : Li Peng, Zaki, Elisa, Réhan, Alexis, Ludovic, Pauline, Farid ... et les autres.

#### A mes amis

Je remercie M. Georges JONKISZ, qui a toujours été là pour m'encourager, depuis ma première année à l'Université (il y a huit ans déjà... on ne rajeunit décidément pas). Tu as toujours pensé que j'y arriverai et je ne t'en remercierai jamais assez. J'espère que je saurai à mon tour insuffler l'envie aux étudiants d'aller plus loin et de croire en eux.

Etienne, je te remercie pour ton soutien inépuisable lorsqu'il s'agit de me remonter le moral. C'est maintenant à mon tour de te soutenir pendant les trois années à venir : tu en es capable et ta thèse **sera très bien**, j'en suis sûre!

#### A ma famille

Je remercie ma famille. Même si vous n'avez pas toujours bien saisi en quoi consistait mes études, vous avez compris que c'était important pour moi.

Maman, Papa, comme à mon habitude je n'en ai fait qu'à ma tête, je vous remercie de m'avoir fait confiance. Merci Papa (aussi) pour avoir sauvé mes données à quatre mois de la soutenance, après le crash de mon disque dur... Merci Guillaume, d'être venu spécialement de Lille pour ma soutenance et de m'avoir toujours montré le chemin. Un merci à Mamie Huguette, qui m'a toujours encouragé. Un grand merci à Frédérique, pour tous ces tendres encouragements.

Un merci spécial, pour mon Parrain, mon étoile.

Pour finir ces longs remerciements, où je n'ai pas pu citer tout le monde, je remercie amoureusement mon compagnon Lucas. Tu as toujours su que ma voie était dans la recherche, je te remercie de m'avoir soutenu à chaque étape.

### Résumé

### Résumé

Le développement des Piles à Combustible (PàC) est en plein essor dans le contexte de transition énergétique que le monde connaît. La production d'énergie électrique par les PàCs possède l'atout majeur de ne rejeter que de l'eau et de la chaleur, sans émission de gaz à effet de serre. Pour un développement et une commercialisation plus large des PàCs comme générateurs d'énergie, leur fiabilité et leur durée de vie.

Cette thèse est dédiée au Contrôle Tolérant aux Fautes dédiée à la gestion de l'eau dans les PàC de type PEMFC. Une gestion appropriée de l'état d'hydratation de la PEMFC contribue à éviter les dégradations irréversibles de ses composants et ses performances, et par conséquent à un allongement de sa durée de vie et une augmentation de sa fiabilité.

Dans ce but, la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes Actif proposée est constituée d'une méthode de diagnostic basée modèle pour la détection et l'isolation des fautes et d'un contrôleur PID auto-adaptatif régulant la surstœchiométrie en oxygène. Il est à noter que cette stratégie a été validée en ligne sur un système PàC réel.

#### Mots-clefs

Pile à Combustible, PEMFC, Diagnostic en ligne, Contrôle, Contrôle Tolérant aux Fautes, Gestion de l'eau.

### Abstract

Fuel Cell (FC) development is expending due to global energy transition. Power generation using FC results in water and heat as by-products, without emission of greenhouse gases. To continue developing and expanding its use as power generators, FC lifetime and reliability have to be enhanced.

This thesis work is dedicated to Fault Tolerant Control System (FTCS) applied to water management in PEM Fuel Cells. An appropriate water management of FC allow to avoid irreversible degradations of FC components and performance that lead to an improvement of FC reliability and lifetime.

The proposed FTCS is composed of a model-based diagnosis method applied to fault detection and isolation, and a self-tuning PID strategy for oxygen excess ratio control. This strategy is tested and validated on-line on a real FC system.

#### **Keywords**

Fuel Cell, PEMFC, on-line Diagnosis, Control, Fault Tolerant Control System, water management.

# Table des matières

Ta	able o	les figures	15
Li	ste d	es tableaux	17
N	omer	nclature	<b>21</b>
In	trod	uction générale	23
1	Gér	néralités sur les Piles à Combustible de type PEMFC	29
	1.1	Histoire des Piles à Combustible	30
	1.2	Les principaux types de piles à combustible	32
		1.2.1 Les PàCs de type PEMFC : avantages et inconvénients	34
	1.3	Description d'une PEMFC	34
		1.3.1 Le cœur de pile	35
		1.3.2 Les plaques bipolaires	36
		1.3.3 Les plaques collectrices	36
	1.4	Fonctionnement d'une PEMFC	37
		1.4.1 Tension d'une cellule PEMFC	39
		1.4.2 Les flux d'eau dans une PEMFC	40
	1.5	Description d'un système PàC	43
		1.5.1 Alimentation en gaz réactifs	44
		1.5.2 Gestion de l'eau	44
		1.5.3 Gestion de la chaleur	44
		1.5.4 Transformation de la puissance produite	44
		1.5.5 Supervision et contrôle	45
	1.6	Dégradations	45
		1.6.1 Dégradations de la membrane	45
		1.6.2 Dégradation des catalyseurs et des supports de catalyseurs	47
		1.6.3 Dégradations des couches de diffusion	48
		1.6.4 Dégradations des plaques bipolaires	48
		1.6.5 Dégradations de la tension	48
	1.7	Causes des dégradations	48
		1.7.1 Mauvaise gestion de l'eau	48
		1.7.2 Cycles de fonctionnement	50
		1.7.3 Dégradations liées aux auxiliaires	51
2	Dia	gnostic des fautes appliqué aux PEMFCs	53
	2.1	Généralités sur le diagnostic	54
	2.2	Les outils de diagnostic	55

		2.2.1	Les mesures directes	•		55
		2.2.2	Les outils élaborés	•		56
	2.3	Les m	éthodes de diagnostic	•		57
		2.3.1	Le diagnostic basé modèle	•		57
		2.3.2	Le diagnostic basé signal	•		60
	2.4	Etat d	le l'art du diagnostic pour les PEMFCs	•		61
		2.4.1	Diagnostic de fautes PàC	•		61
		2.4.2	Diagnostic de fautes des auxiliaires	•	 •	65
3	Ver	s le Co	ontrôle Tolérant aux Fautes (FTCS)			69
	3.1	Comm	nandes appliquées aux systèmes PàC de type PEMFC			70
	3.2	Influe	nce des fautes sur le contrôle du système	•		73
	3.3	Gestic	on de la faute	•		74
		3.3.1	Cas n°1 : Recouvrement de la faute	•		74
		3.3.2	Cas $n^{\circ}2$ : Compensation	•		74
		3.3.3	Cas n°3 : Arrêt de l'installation.	•		75
	3.4	Le Co	ntrôle Tolérant aux Fautes	•		75
		3.4.1	Introduction au Contrôle Tolérant aux Fautes	•		75
		3.4.2	Les classes de Contrôles Tolérants aux Fautes	•		77
		3.4.3	Le FTCS appliqué aux PEMFCs	•	 •	80
4	Dis	positif	expérimental			83
	4.1	Mono	cellule PEMFC de 50 $cm^2$			84
	4.2	Descri	iption du banc d'essai FCT			86
		4.2.1	Alimentation en gaz réactifs			86
		4.2.2	Gestion de l'eau			87
		4.2.3	Gestion de la chaleur	•		87
		4.2.4	Gestion de la puissance produite	•		88
		4.2.5	Supervision et contrôle	•		88
	4.3	Impla	ntation de la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes	•		89
	4.4	Expér	imentations	•		92
		4.4.1	Conditions opératoires en fonctionnement "normal"	•		92
		4.4.2	Simulation de la faute	•	 •	93
5	Le	FTCS	appliqué aux fautes de gestion de l'eau			97
	5.1	Descri	iption du FTCS			99
	5.2	Diagn	ostic basé modèle			101
		5.2.1	Les indicateurs de l'engorgement et de l'assèchement	•		101
		5.2.2	Résidus et seuils de tolérance			101
		5.2.3	Modèle à base de Réseaux de Neurones	•		101
	5.3	Modu	le de reconfiguration et gestion des fausses alarmes	•		106
	5.4	Contro	ôleur PID auto-adaptatif	•		106
	5.5	Résult	tats expérimentaux	•		107
		5.5.1	Phase 1	•		109
		5.5.2	Phase 2 : engorgement et détection	•		111
		5.5.3	Phase 3 : recouvrement et engorgement	•		111
		5.5.4	Phase 4 et 5 : recouvrements et engorgements	•		112
		5.5.5	Effets du recouvrement sur la tension et la perte de charge .	•		112
		5.5.6	Exemple avec un seuil de tolérance différent			115

Conclusion générale	119
Bibliographie	123

# Table des figures

1 2	Puissance nominale sur le réseau réunionnais au 31/12/2014 Projets Régionaux	$\begin{array}{c} 24 \\ 25 \end{array}$
1.1	Historique des PàC	31
1.2	Fuel Cell Vehicles (FCV) produites en série	31
1.3	FCV de démonstration ou concept cars	32
1.4	Schema d'un montage PaC	35
1.5	Photographie d'AME, produite par Paxitech a partir de Nafion	30
1.0	Differentes geometries de canaux	31
1.1	Photographie de canaux en quadruple-serpentins, $LE^{-P}$	31
1.8	Schema de fonctionnement d'une PEMFC	38
1.9		43
2.1	Les étapes du diagnostic	55
2.2	Principe de fonctionnement d'un diagnostic basé sur les résidus	58
3.1	Influence des fautes sur le contrôleur	73
3.2	Classification des types de Contrôle Tolérant aux Fautes	77
3.3	Schéma global du Contrôle Tolérant aux Fautes Actif	79
3.4	Fonctionnement d'un FTCS par sélection du contrôleur	79
4.1	Schéma constructeur des plaques bipolaires	85
4.2	Pile à Combustible	85
4.3	Photo du banc d'essai	86
4.4	Schéma structurel du banc d'essai	87
4.5	Composants du banc d'essai	88
4.6	Face-avant du VI de contrôle du banc d'essai	90
4.7	Module LabView®pour la communication avec MatLab®	92
4.8	Schéma global de la mise en place du FTCS à l'aide de MatLab®et LabView®	93
4.9	Engorgement causé par une chute de surtœchiomètrie	94
4.10	Mécanisme de l'engorgement d'un canal	95
5.1	Les différents états hydriques d'une PEMFC et les types de dégradations	00
5.2	Schéme détaillé du AFTCS	90
5.2	Base de données du RN	99
5.0	Architectures des Réseaux de Neurones utilisés	103
5.5	Schéma bloc des Réseaux de Neurones	104
5.6	Validation du RN : courbes	105
5.7	Validation du RN : signaux d'erreur	106
5.8	Résultats expérimentaux	108
	<b>A</b>	

5.9	Phases des résultats expérimentaux
5.10	Résultats expérimentaux : Phase 1
5.11	Résultats expérimentaux : Phase 2
5.12	Résultats expérimentaux : Phase 3
5.13	Résultats expérimentaux : Phase 4
5.14	Résultats expérimentaux : Phase 5
5.15	Superposition des différents engorgements
5.16	Résultats expérimentaux avec un seuil différent

# Liste des tableaux

1.1	Tableau récapitulatif des types de PàC       Construction         Tableau des ordres de grandeur des constantes de temps des éléments d'un	33
1.4	système PàC	39
2.1	Tableau récapitulatif des travaux traitant du diagnostic appliqué aux fautes PàC	66
2.2	Tableau récapitulatif des travaux traitant du diagnostic appliqué aux fautes des auxiliaires	68
$4.1 \\ 4.2$	Caractéristiques de l'AME produite par Paxitech	84 91
$5.1 \\ 5.2 \\ 5.3$	Récapitulatif des caractéristiques pour l'identification des RN	$105 \\ 105 \\ 110$

### Nomenclature

### Acronymes

AME	Assemblage Membrane Electrodes	
FCV	Fuel Cell Vehicle	
FTCS	Fault Tolerant Control System	
PEMF	°C Proton Exchange Membrane Fuel Cell	
PFSA	PerFluoroSulphonicAcid	
PàC	Pile à Combustible	
Lettre	es grecques	
λ	Teneur en eau de la membrane	_
$ ho_{dry}$	Masse volumique de la membrane sèche	$g.m^{-3}$
au	Conductivité de la membrane	$\Omega.cm^{-1}$
$\xi_{1,2,3,4}$	Coefficients semi-empiriques	_
Lettre	es latines	
$\dot{m}$	Débit massique	sccm
A	Aire de la surface active	$cm^2$
В	Coefficient semi-empirique	_
с	Concentration molaire de gaz	$mole.cm^{-3}$
D	Coefficient de diffusion effectif de l'eau	$(m^2 s^{-1})$
e	Epaisseur de la membrane	$cm^2$
$E_{Nerns}$	$_{st}$ Tension de Nernst	Volts
EW	Masse molaire de la membrane sèche	$g.mol^{-1}$
F	Constante de Faraday	$C.mol^{-1}$
i	Densité de courant	$A.cm^{-2}$
$J_{cell}$	Densité totale de courant	$A.m^{-1}$

N	Densité de flux molaire	$mol.m^{-2}.s$
$n_{drag}$	Flux électroosmotique	$mol.m^{-2}.s$
$n^o_{drag}$	Coefficient de transport électroosmotique	_
p	Pression partielle	atmosphère
R	Constante des gaz universelle	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
r	Résistance électrique des éléments d'une cellule	Ω
$R_m$	Résistance de la membrane	Ω
S	Surstœchiométrie	_
Т	Température absolue	Kelvin
V	Tension	Volts
Indic	es	
exp	Valeur expérimentale	
act	Activation	
av	Valeur moyenne	
cell	Cellule	
conc	Concentration	
Diff	Diffusif	
l	Carburant liquide	
ohm	Ohmique	
m	Membrane	
Parar	nètres de la méthode de diagnostic	
$\Delta P_{RN}$	Pression différentielle à la cathode estimée par un modèle RN	kPa
$\Delta t$	Période d'échantillonnage	s
$\epsilon_{\Delta}P$	Résidu sur la pression différentielle	kPa
$\epsilon_V$	Résidu sur la tension	%
$\hat{y}$	Sortie estimée par le modèle RN	

- Fonction d'activation d'un neurone  $\phi$
- Matrice des poids d'un RN  $\theta$
- Nombre de points testés n
- Seuil de tolérance sur la tension  $s_V$

$s_{\Delta P}$	Seuil de tolérance sur la pression différentielle	kPa
u	Vecteur d'entrée du système à modélisé	
$V_{RN}$	Tension estimée par un modèle RN	Volts
y	Vecteur de sortie du système à modéliser	
Parar	nètres de la stratégie de contrôle	
e	Erreur de suivi de trajectoire	
$kc, \tau_i,$	$\tau_d$ Paramètres Proportionnel, Intégral et Dérivé du régulateur	

- *u* Sortie à réguler
- $y^{lin}$  Sortie du modèle linéarisé
- $y_{set}$  Consigne du régulateur

### Introduction générale

La Réunion connait un contexte énergétique tendu en raison de son insularité. Du point de vue énergétique, c'est une Zone non Interconnectée (ZNI), isolée de tout autre réseau et ne disposant pas de ressources fossiles. Il en résulte une situation de forte dépendance énergétique : 86.8 % de ressources importées, dont 62 % des importations sont utilisées pour le transport, et 23 % pour la production d'électricité.

Comptant pour 33 % dans la production d'énergie électrique<sup>1</sup>, la part des énergies renouvelables (EnR) est en recul devant celles du charbon, du fioul et du pétrole importés. A la problématique de la dépendance, s'ajoutent les impacts négatifs de cette situation sur la balance économique et le bilan carbone<sup>2</sup>.

Pour pallier cette situation, et dans l'objectif d'atteindre l'autonomie en énergie électrique à l'horizon 2030, le Schéma Régional Climat Air Energie (SRCAE) de La Réunion <sup>3 4</sup>, vise à renforcer la part des EnR dans le mix énergétique en mettant en œuvre (Figure 1<sup>5</sup>) :

- le développement du parc photovoltaïque,
- la production de biogaz (unité de méthanisation expérimentale et unité de gazéification à visée démonstrative),
- l'utilisation plus étendue de la biomasse (la bagasse est utilisée comme combustible dans deux centrales thermiques opérationnelles depuis 1992 et 1995),
- l'exploitation de nouvelles unités hydro-électriques, le développement des fermes éoliennes (avec un objectif de 35 MW pour 2020, 50 MW pour 2030),
- et l'exploitation des énergies marines (encore en R&D).

Cependant, face à la hausse de la demande en énergie électrique, augmenter la part des énergies intermittentes dans le mix énergétique pourrait conduire à une fragilisation du réseau électrique. Pour la production électrique comme pour le transport, cette croissance de

<sup>1. 14,9 %</sup> issue de l'hydraulique, 8,9 % de la biomasse (bagasse) et le reste en photovoltaïque-éolienbiogaz

<sup>2.</sup> la combustion des produits pétroliers et du charbon produit 4196 kilotonnes de CO2 par an , soit 4.97 tonnes/an/habitant de CO2 en 2014.

<sup>3.</sup> Le SRCAE est un schéma dont l'objectif est de définir les orientations et les objectifs, à l'échelle de la région et à l'horizon 2020 et 2050, en matière de lutte contre la pollution atmosphérique, de maîtrise de la demande énergétique, de développement des énergies renouvelables, de réduction des émissions de gaz à effet de serre et d'adaptation aux changements climatiques

<sup>4.</sup> http://www.reunion.developpement-durable.gouv.fr

<sup>5.</sup> Sources : EDF, Albioma BR, Albioma GOL - Auteur : oer, extrait du BER 2014



FIGURE 1 – Puissance nominale sur le réseau réunionnais au 31/12/2014

la consommation est compensée par une augmentation des importations d'énergies fossiles, ce qui accentue les problématiques de la dépendance, de la balance économique et du bilan carbone. C'est pour faire face à cette augmentation que le SRCAE prévoit aussi de développer les solutions intelligentes de gestion du réseau électrique, de coupler les installations photovoltaïques avec des solutions de stockage, de poursuivre les programmes de recherche et d'innovation sur le développement des ENR, avec stockage et auto-consommation et de généraliser l'utilisation de véhicules propres.

Le stockage est une solution pour réduire les risques que font peser les énergies intermittentes sur la stabilité du réseau. Le stockage de l'énergie excédentaire, pour une utilisation différée, soit en cas de pic de consommation sur le réseau électrique, soit pour une distribution pour les transports routiers (véhicules électriques par exemple) permet de rééquilibrer le réseau et d'adapter la production à la demande.

L'hydrogène est un vecteur d'énergie qui répond aux exigences précédemment citées, il peut être produit et stocké à l'aide des énergies excédentaires, et consommé par la suite, au moyen de deux technologies maîtrisées : l'électrolyseur et la Pile à Combustible (PàC). De plus, les co-produits des réactions électro-chimiques dans le processus de production et de consommation de l'hydrogène sont la chaleur et l'eau. La chaîne de production et de consommation de l'hydrogène est considéré comme étant à zéro-émission de CO2, ce qui est un avantage écologique considérable.

Ces problématiques rejoignent de nombreux SRCAE de Régions de France métropolitaine, où des projets de stockage par l'hydrogène ont déjà vus le jour, comme le projet MYRTE pour le stationnaire, et le projet MobyPost pour le transport. Le projet MYRTE en Corse (2011) répond à la problématique d'un territoire insulaire, et donc d'un réseau instable lors de variations de production ou de consommation. Résultats d'un partenariat entre l'Université de Corse, le Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA) et Areva, la plateforme de Vignola regroupe des panneaux photovoltaïques, des électrolyseurs et des PàCs. L'énergie solaire produite est stockée sous forme d'hydrogène par les électrolyseurs, pour être ensuite restituée au réseau EDF pendant les pics de consommation par les PàCs, afin de le soulager.

Le projet MobyPost en Franche-Comté (2014) quant à lui est issu d'un partenariat entre

huit acteurs issus de quatre pays de l'Union Européenne (France, Allemange, Suisse et Italie). Il est constitué d'une flotte de véhicules fonctionnant à l'hydrogène, dédiés à la distribution de courrier par le personnel de La Poste®, et d'une plateforme de production d'hydrogène à partir de panneaux photovoltaïques. La coordination du projet, la partie ergonomie et la chaîne de traction sont portées par l'Université Technologique de Belfort-Montbéliard, les véhicules sont produits par Ducati Energia, les PàC par MES et le stockage de l'hydrogène par MaHytec basé à Dole.



(a) Projet MobyPost, en Franche-Comté



(b) Projet MYRTE, en Corse

FIGURE 2 – Projets Régionaux

Même si la majorité des projets médiatisés concernent des démonstrateurs, le développement et la commercialisation des PàCs sont bels et bien en voie de développement au niveau européen comme au niveau mondial, car ils répondent à des besoins communs : la diminution des émissions des gaz à effet de serre, le besoin de stockage de l'énergie, l'utilisation d'énergies alternatives aux produits fossiles. L'utilisation des PàCs connait un essor, dont les PàCs de type PEMFC : sur 215.3 MW produits par des PàCs dans le monde, 68 MW sont produits par des PEMFCs. Cet intérêt pour les PEMFCs s'explique notamment par l'utilisation des PEMFCs pour les applications de transport [1], qui connaissent un fort développement.

Pour une généralisation des PàCs dans le monde, la technologie nécessite encore : l'augmentation de la sûreté de fonctionnement, l'amélioration des performances et l'allongement de la durée de vie. Les thématiques de recherche associées à l'optimisation des PàCs sont l'étude de la géométrie de ses composants, la recherche de nouveaux matériaux, l'amélioration des stratégies de contrôle et la recherche de nouvelles méthodes de stockage, et toutes ont pour objectif d'améliorer la performance, la fiabilité et la rentabilité de cette technologie.

Les travaux présentés dans cette thèse se positionnent sur l'amélioration des stratégies de contrôle des piles de types PEMFC, en réponse à des problèmes techniques ou à des conditions opératoires défaillantes appelées des fautes, et présentant des risques en termes de dégradation et de vieillissement de ses composants.

Ce travail de thèse est dédié au développement d'une stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes (FTCS, Fault Tolerant Control System) pour les Piles à Combustible de type PEMFC. Il s'agit de diagnostiquer les fautes de gestion de l'eau, et d'agir sur les conditions opératoires pour recouvrer un état sain et réduire au maximum leur impact sur le vieillissement prématuré des composants de la PàC.

### Organisation du mémoire

Ce mémoire est composé de 5 chapitres.

Le Chapitre 1 est dédié aux Généralités sur les Piles à Combustible de type PEMFC. Il contient un historique rapide des PàCs et une description de la technologie des PàC de type PEMFC, ainsi que des systèmes PàC. Une attention particulière est portée sur les dégradations des composants d'une PEMFC, ainsi que sur les causes des dégradations.

Le Chapitre 2 se concentre sur le diagnostic des fautes appliqué aux PEMFCs, pose les différents outils et méthodes de diagnostic, pour finir sur un état de l'art des différentes méthodes dédiées au diagnostic de fautes PàC et des fautes des auxiliaires du système PàC.

Le Chapitre 3 expose la nécessité de développer des stratégies de contrôle spécifiques aux comportements avec fautes pour les PàCs. Les différentes gestions de fautes sont exposées et une section est dédiée au Contrôle Tolérant aux Fautes contenant une définition et état de l'art des stratégies de contrôle tolérant aux fautes appliquées aux PEMFCs.

Le Chapitre 4 présente le banc d'essais et la PàC de type PEMFC utilisés lors des tests expérimentaux. Une section est dédiée à l'implantation du FTCS au système de contrôle et d'acquisition déjà existant au sein du banc d'essai. En fin de Chapitre les conditions opératoires utilisées pour tester le FTCS sont décrites.

Pour finir, le Chapitre 5 expose un Contrôle Tolérant aux Fautes appliqué aux fautes de gestion de l'eau, et les résultats des tests expérimentaux sur un système PàC réel.

### Communications scientifiques issues de cette thèse

Les différents travaux effectués pendant cette thèse ont donné lieu à des publications et à des communications orales lors de conférences internationales.

La comparaison des performances d'un modèle empirique et d'un modèle de connaissance a été présentée et publiée :

- Lebreton, C., Roche, S., Benne, M., Damour, C., et Kadjo, J-J. Mechanistic description versus systemic modelling of PEMFC. IDHEA, 12-14 Mai 2014, Nantes, France.
- Grondin-Perez, B., Roche, S., Lebreton, C., Benne, M., Damour, C., et Kadjo, J.-J. (2014). Mechanistic Model versus Artificial Neural Network Model of a Single-Cell PEMFC. Engineering, 6(July), 418-426. http://doi.org/http://dx.doi.org/10. 4236/eng.2014.68044

Des travaux menés sur la mise en place en ligne d'un contrôleur PID auto-adaptatif pour la régulation de la sursœchiométrie en oxygène ont été menés et publiés :

 Damour, C., Benne, M., Lebreton, C., Deseure, J., et Grondin-Perez, B. (2014). Realtime implementation of a neural model-based self-tuning PID strategy for oxygen stoichiometry control in PEM fuel cell. International Journal of Hydrogen Energy, 39(24), 12819-12825. http://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2014.06.039.

Les premiers résultats du Contrôle Tolérant aux Fautes appliqué à la gestion de l'eau ont été présentés aux conférences suivantes et publiés :

- Lebreton, C., Damour, C., Benne, M., Grondin-perez, B., et Chabriat, J. (2014). Méthode en ligne de détection, isolation et recouvrement de fautes appliquée à la PEMFC. In GDR- HysPàC, Poitiers. pour les résultats préliminaires.
- Lebreton, C., Damour, C., Benne, M., Josset, C., Auvity, B., et Grondin-Perez, B. (2015). Online FTCS applied to PEMFC water management. In FDFC Toulouse.
- Lebreton, C., Benne, M., Damour, C., Yousfi-Steiner, N., Grondin-Perez, B., Hissel, D., et Chabriat, J.-P. (2015). Fault Tolerant Control Strategy applied to PEMFC water management. International Journal of Hydrogen Energy, 40(33), 10636-10646. http://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.06.115..

### Chapitre 1

# Généralités sur les Piles à Combustible de type PEMFC

### Sommaire

1.1	Hist	toire des Piles à Combustible	30
1.2	Les	principaux types de piles à combustible	<b>32</b>
	1.2.1	Les PàCs de type PEMFC : avantages et inconvénients	34
1.3	Des	cription d'une PEMFC	<b>34</b>
	1.3.1	Le cœur de pile	35
	1.3.2	Les plaques bipolaires	36
	1.3.3	Les plaques collectrices	36
1.4	Fon	ctionnement d'une PEMFC	37
	1.4.1	Tension d'une cellule PEMFC	39
	1.4.2	Les flux d'eau dans une PEMFC	40
1.5	Des	cription d'un système PàC	<b>43</b>
	1.5.1	Alimentation en gaz réactifs	44
	1.5.2	Gestion de l'eau	44
	1.5.3	Gestion de la chaleur	44
	1.5.4	Transformation de la puissance produite	44
	1.5.5	Supervision et contrôle	45
1.6	$\mathbf{D\acute{e}g}$	radations	<b>45</b>
	1.6.1	Dégradations de la membrane	45
	1.6.2	Dégradation des catalyseurs et des supports de catalyseurs	47
	1.6.3	Dégradations des couches de diffusion	48
	1.6.4	Dégradations des plaques bipolaires	48
	1.6.5	Dégradations de la tension	48
1.7	Cau	ses des dégradations	<b>48</b>
	1.7.1	Mauvaise gestion de l'eau	48
	1.7.2	Cycles de fonctionnement	50
	1.7.3	Dégradations liées aux auxiliaires	51

### Introduction

L ES PILES À COMBUSTIBLE sont aujourd'hui commercialisées dans le monde entier, pour des applications stationnaires (alimentation off-grid en groupe électrogène, source d'énergie on-grid de réseaux hybrides), de transports (véhicules légers, bus, tramways, bateaux) ou portables (alimentation d'ordinateur, de téléphones portables ou de tablettes, d'équipements militaires). Les systèmes fonctionnant avec des Piles à Combustible répondent aux critères industriels et sont fabriqués en série. Cependant, la durée de vie des piles qui dépend de leur vitesse de vieillissement ainsi que leur fiabilité doivent encore être améliorées.

Dans ce Chapitre nous proposons de voir dans une première partie une histoire brève des Piles à Combustible, puis un tour d'horizon des différents types de pile pour ensuite nous concentrer sur les piles de type PEMFC. Nous décrirons la structure et le fonctionnement global d'une PEMFC ainsi que les éléments composant un Système Pile à Combustible. Pour mieux comprendre le vieillissement de ces piles, une section sera dédiée aux dégradations des performances et des composants, et aux fautes provoquer ou accentuer ces dégradations.

### 1.1 Histoire des Piles à Combustible

La Pile à Combustible (PàC) est une technologie vieille de près de deux siècles. Elle suscite un vif intérêt de la part du monde scientifique et économique depuis la moitié du  $xx^e$  siècle, comme illustré par la frise à la Figure 1.1.

L'effet pile à combustible est observé pour la première fois en 1839 par M. Christian Schonbeïn, lors d'une expérience d'électrolyse. Alors qu'il cesse d'alimenter un électrolyseur, il observe qu'un courant parcourt le circuit dans le sens inverse au courant appliqué précédemment. Il en déduit que l'hydrogène et l'oxygène produits réagissent ensemble pour créer un courant électrique. Il découvre ainsi l'électrolyse inverse : l'effet pile à combustible.

Elaborée quelques années plus tard (1842), la première PàC est alors expérimentée par Sir William Grove (juge anglais et chimiste amateur). Devant la complexité du principe, et les rendements très faibles, il faut attendre près d'un siècle avant que la PàC fasse l'objet de recherches abouties.

En 1953, Francis Thomas Bacon, un ingénieur anglais met au point la première PàC avec un bon rendement et une structure plus simple d'utilisation. Les PàCs sont alors surtout développées pour un domaine d'application spécifique : l'aérospatial. L'absence de combustion et de parties mécaniques en mouvement sont des atouts appréciables dans les conditions de missions spatiales. Ainsi les missions Gemini (1963) et Apollo (1968) ont été les premières à utiliser les PàCs, alors de type AFC (Alcaline Fuel Cell).

La communauté scientifique s'intéresse alors de plus en plus à la PàC, et le nombre de recherches dans ce domaine ne font que croître. Le concept de la pile est repensé et amélioré, les membranes et auxiliaires permettant son bon fonctionnement sont développés. En 1970, Dupont de Nemours crée le matériau Nafion®qui permet l'essor des piles de type PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell). L'utilisation de PàC pour la



FIGURE 1.1 – Historique des PàC

motorisation ouvre un autre domaine de recherche et d'intérêt.

Un autre élément déclencheur va permettre un essor considérable de ce domaine de recherche. En 1973, résultat politique d'une mésentente entre les pays occidentaux et les pays de l'OPEP, le premier choc pétrolier réveille les consciences. Le prix du baril de pétrole n'est que trop dépendant des aléas politiques, et les pays pétroliers jouent de leur monopole. Les pays occidentaux recherchent alors une alternative aux énergies fossiles.

La prise de conscience environnementale mêlée au désir de diminuer la dépendance aux énergies fossiles va créer un contexte favorable au développement des PàC. Le besoin est créé, le marché aussi, la PàC devient alors une innovation de la fin du XXème siècle. La première voiture à PàC (FCV) a été créée par General Motors en 1966, la General Motors EV1. De nos jours, de nombreux constructeurs automobiles développent des véhicules fonctionnant grâce à des PàCs : Honda, Audi [2], Mercedes, General Motors, Hyundai, Nissan, Volkswagen, Kia, Toyota, avec des design classiques ou plus futuristes comme le montre la Figure 1.2. Les éléments sont tirés de la webographie et de [3].







(b) Toyota Mirai

FIGURE 1.2 – Fuel Cell Vehicles (FCV) produites en série



FIGURE 1.3 – FCV de démonstration ou concept cars

### 1.2 Les principaux types de piles à combustible

Les piles à combustible sont des convertisseurs électro-chimiques, qui produisent de l'électricité à partir de l'énergie chimique contenue dans des combustibles tels que l'hydrogène, le méthanol ou le kérosène. Un électrolyte permet la dissociation du combustible en électrons et ions mobiles. Ces ions mobiles traversent l'électrolyte tandis que les électrons sont forcés de parcourir un circuit conducteur externe créant ainsi un courant électrique. L'électrolyte utilisé peut être solide (membrane polymère, céramique) ou liquide (acides phosphoriques, sels fondus).

Il existe différents types de PàCs définis par l'électrolyte, le combustible utilisé et la température de fonctionnement [4]. La température de fonctionnement conditionne pour une grande partie son application. Comme le montre le tableau 1.1 [5], les piles basse température sont plus adaptées à des applications portables, alors que les piles fonctionnant à haute température sont préférenciellement utilisées pour des applications stationnaires.

Domaine d'application		Portable, transport	Portable	Portable, trans-	port, stationnaire		Transport, stationnaire		Portable, trans-	port, stationnaire	Transport, cogénéra-	tion, stationnaire	Cogénération, produc-	tion centralisée d'élec-	tricité, maritime		Stationnaire		Portable			
Température d'utilisa-	tion	$65 - 90^{\circ}C$	$20 - 80^{o}C$	$60 - 100^{o}C$			$120 - 180^{o}C$		$90 - 120^{o}C$		$200^{o}C$		$650^{o}C$				800 -	$1050^{o}C$	$90 - 120^{o}C$			
Ion trans- portée		OH-	OH-	H+			$\mathrm{H}+$		H+		H+		CO3 2-				02-		H+			
Réactif à la cathode		Dioxygène	=	=			=		=		=		=				=		=			
Réactif à l'anode		Dihydrogène	NaBH4 en solution	Dihydrogène			Dihydrogène		Méthanol		Dihydrogène		Dihydrogène,	méthane,	gaz de	$\operatorname{synth}\operatorname{\acute{ese}}$	Dihydrogène		Acide for-	mique	(acide mé-	thanoïque)
Technologie		Pile à combustible alca- line	Pile à combustible à hy- drure de bore direct	Pile à combustible à	membrane échangeuse	an provous	PEMFC haute tempé-	rature	Pile à combustible à mé-	thanol direct	Pile à combustible à	acide phosphorique	Pile à combustible à	carbonates fondus			Pile à combustible à	oxyde solide	Pile à combustible à	acide formique		
		AFC	DBFC	PEMFC			-TH	PEMFC	DMFC		PAFC		MCFC				SOFC		FAFC			

TABLE 1.1 – Tableau récapitulatif des types de PàC

### 1.2.1 Les PàCs de type PEMFC : avantages et inconvénients

### Les avantages

L'électrolyte utilisée dans les PEMFCs est une membrane polymère solide. Elle empêche plus efficacement la traversée des gaz réactifs entre l'anode et la cathode qu'un électrolyte liquide. Les PEMFC permettent de générer une forte densité de courant. Cet argument allié aux types de matériaux utilisés en fait une pile très légère et compacte avec une densité de puissance importante.

#### Les inconvénients

Les PEMFC sont sensibles à l'empoisonnement au monoxyde de carbone (CO). Le CO se lie aux particules de platine (utilisé comme catalyseur) et diminue ainsi le nombre de sites possibles de la réaction affectant les performances de la pile. La tolérance à l'empoisonnement au CO est, seulement de quelques ppm.

Un autre inconvénient des PEMFCs réside dans sa sensibilité à la gestion de l'eau et de la chaleur, ce qui est très important et conditionne fortement leurs performances et leur durée de vie.

Ces deux contraintes poussent une partie de la communauté scientifique à se tourner vers les HT-PEMFC qui sont beaucoup moins sensibles à l'empoisonnement et aux problématiques de gestion de l'eau.

### 1.3 Description d'une PEMFC

Les piles de type PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell ou Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell) ont une température de fonctionnement comprise entre 60 et  $100^{\circ}C$ . Cette température relativement basse comparée aux températures de fonctionnement des autres PàCs permet des applications mobiles comme par exemple les transports ou l'alimentation d'éléments électroniques portables (téléphones, tablettes, ordinateurs). Les combustibles les plus adaptés sont l'hydrogène, le gaz naturel et le méthanol. L'électrolyte utilisé est une membrane polymère solide hydratée.

Une monocellule de type PEMFC est composée des éléments suivants :

- une AME (Assemblage Membrane Electrodes), ou encore appelée le cœur de pile,
- deux plaques bipolaires gravées de canaux de distribution des gaz,
- deux plaques collectrices pour la récupération du courant produit par la pile,
- des joints assurant l'étanchéité de la pile une fois assemblée.
- des plaques de maintien.

La Figure 1.4 représente ces différents éléments. Le cœur de pile et les plaques bipolaires sont décrites ci-dessus :



FIGURE 1.4 – Schéma d'un montage PàC

### 1.3.1 Le cœur de pile

Tous les éléments composant une PàC permettent l'utilisation du cœur de pile. Ce cœur de pile est l'élément qui permet de convertir l'énergie chimique en énergie électrique.

L'Assemblage Membrane Electrode (AME) est fait d'acide polymère sulfonique perfluoré PFSA (PerFluoroSulphonicAcid) pris en sandwich entre deux électrodes poreuses imprégnées de platine qui sert de catalyseur à la réaction (Figure 1.5<sup>1</sup>). Le côté extérieur des électrodes est couvert d'un revêtement hydrophobe, comme par exemple le Teflon. Ce revêtement favorise la circulation des gaz vers les sites catalytiques et l'évacuation de l'eau. La quantité de platine, même si elle avoisine les 0.60  $mg/cm^2$  est un frein au développement économique des PàCs à cause du coût de ce matériau noble. Des recherches visent d'ailleurs à remplacer ces électrodes coûteuses par des composés alternatifs [6]

Les membranes les plus utilisées sont faites en Nafion®. Le Nafion®est une marque de matériau déposée de la société DuPont De Nemours. Ce polymère fluoré est doté d'une grande stabilité chimique et thermique.

D'autres membranes de type PEM sont développées mais demeurent moins connues que la membrane Nafion<sup>®</sup>. D'autres fabricants proposent des membranes perfluorées ou non, avec des propriétés semblables au Nafion<sup>®</sup>, par exemple [7] :

<sup>1.</sup> http://www.paxitech.com/


FIGURE 1.5 – Photographie d'AME, produite par Paxitech à partir de Nafion®

- Asahi Chemical Industry Company Ltd, au Japon,
- Ionac Chemical Company, Sybron Corporation, aux Etats-Unis,
- Ionics Inc, aux Etats-Unis,
- Pall RAI Inc, aux Etats-Unis.

### 1.3.2 Les plaques bipolaires

Les plaques bipolaires remplissent trois fonctions essentielles :

- la distribution des gaz réactifs vers les électrodes et couches de diffusion,
- la collecte du courant généré pendant la réaction,
- et l'évacuation de l'eau liquide.

Pour remplir la première et la troisième fonction, les plaques sont gravées de canaux de distribution de gaz. La géométrie de ces canaux dépend des caractéristiques de la PàC utilisée et a une grande influence sur la gestion de l'eau dans la pile et sur la répartition des gaz. Les géométries de canaux les plus courantes sont en *parallèle*, en *serpentins*, en *serpentins parallèles*, en *spirales* ou avec des *canaux discontinus*, comme illustré par la Figure 1.6. Le nombre de canaux peut varier selon les caractéristiques voulues, notamment pour la géométrie en serpentins parallèles appelée aussi multiple-serpentins. La Figure 1.7 présente la photographie de canaux en quadruple-serpentins.

Pour assurer la collecte du courant produit au niveau des sites de réaction, les plaques bipolaires doivent avoir une grande conductivité électrique. Elles doivent être résistantes aux sollicitations thermiques et mécaniques et être chimiquement stables. Enfin, pour une homogénéité des températures, les plaques doivent montrer une bonne conductivité thermique. Pour répondre à ces critères, elles sont le plus souvent en graphite.

### **1.3.3** Les plaques collectrices

Les plaques collectrices sont insérées entre les plaques bipolaires et les plaques de maintien. Elles sont fabriquées dans des matériaux à forte conductivité électrique car elles permettent de récolter le courant produit par la PàC. Elles sont souvent recouvertes



(e) Discontinus





FIGURE 1.7 – Photographie de canaux en quadruple-serpentins,  $LE^2P$ 

d'un film de matériaux hautement conducteur comme l'or pour minimiser la résistance électrique des plaques au transport du courant, et de ce fait minimiser les pertes ohmiques.

### 1.4 Fonctionnement d'une PEMFC

La PEMFC convertit l'énergie chimique de l'hydrogène en énergie électrique grâce à la membrane échangeuse de protons (PEM).

A l'anode, le gaz entrant est de l'hydrogène. L'hydrogène se décompose au niveau des sites catalytiques en protons et en électrons, il y a oxydation de l'hydrogène (Equation 1.1). La membrane échangeuse de protons contraint les protons et les électrons à emprunter un chemin différent, ainsi les protons peuvent traverser la membrane qui leur est perméable lorsqu'ils sont sous forme hydratée. Les électrons quant à eux circulent alors par l'anode vers la cathode ce qui crée un courant électrique.

A la cathode, l'oxygène subit une réduction. Les électrons et les protons se recombinent

à l'oxygène pour produire les molécules d'eau (Equation 1.2).

La réaction globale est décrite à l'équation 1.3.

$$Oxydation: 2H_2 \longrightarrow 4H^+ + 4e^- \tag{1.1}$$

$$R\acute{e}duction: O_2 + 4H^+ + 4e^- \longrightarrow 2H_2O \tag{1.2}$$

$$2H_2 + O_2 \longrightarrow 2H_2O + \acute{e}lectricit\acute{e} + chaleur$$
(1.3)

En sortie de la PEMFC, on retrouve les gaz non consommés ainsi que de l'eau sous forme liquide ou vapeur. Les flux d'électrons, de protons, de gaz et d'eau sont représentés sur la Figure 1.8 extraite de [8].



FIGURE 1.8 – Schéma de fonctionnement d'une PEMFC

Les phénomènes internes aux PEMFCs sont multiphysiques :

- électrochimie,
- transport de masse,
- transport de chaleur.

La complexité d'un système PEMFC vient aussi du fait qu'il contient des éléments avec des dynamiques différentes. Le tableau suivant donne un exemple pour un système PEMFC dimensionné pour de la propulsion automobile, les différents ordres de grandeur des constantes de temps associées aux éléments du système sont listés [9]. Elles vont de  $10^{-19}$  s pour l'électrochimie à la seconde pour les contrôleurs de débit.

Electrochimie	$10^{-}19 {\rm ~s}$
Collecteurs d'hydrogène et d'air	$10^{-1} { m s}$
Teneur de eau de la membrane	incertain
Contrôle des débits/ dispositif d'alimentation	$10^{0} { m s}$
Dynamique d'inertie du véhicule	$10^{1} { m s}$
Température de cellule et de pile	$10^2 { m s}$

TABLE 1.2 – Tableau des ordres de grandeur des constantes de temps des éléments d'un système PàC

### 1.4.1 Tension d'une cellule PEMFC

La tension aux bornes d'une cellule PEMFC résulte des caractéristiques des phénomènes internes à la pile. Cette tension se compose communément de trois surtensions (équation 1.4).

$$V_{cell} = E_{Nernst} - V_{act} - V_{ohm} - V_{conc}$$
(1.4)

où  $E_{Nernst}$  est le potentiel thermodynamique de la cellule,  $V_{act}$  est la surtension d'activation,  $V_{ohm}$  la surtension ohmique,  $V_{conc}$  la surtension de concentration (ou de masse)

La surtension d'activité est due à la limitation de la vitesse des réactions électrochimiques, la surtension ohmique représente les phénomènes de résistance des éléments internes, et la surtension de concentration est due à la limitation du transfert de masse aux abords des sites de réaction.

Le potentiel thermodynamique de la cellule est défini par l'équation de Nernst [10] :

$$E_{Nernst} = -\frac{\Delta \bar{g}_f^o}{2F} + \frac{RT}{2F} \left[ ln \left( \frac{p_{H_2}^{av}}{p_0} \right) + \frac{1}{2} ln \left( \frac{p_{O_2}^{av}}{p_0} \right) \right]$$
(1.5)

où  $\Delta \bar{g}_f^o$  est la variation de l'énergie de Gibbs à la pression standard, F est la constante de Faraday, R est la constante des gaz universelle, T la température de la cellule (en Kelvin),  $p_{H_2/O_2}^{av}$  les valeurs moyennes de la pression partielle de gaz  $H_2$  et  $O_2$  aux interfaces gaz/membrane (en atm), et  $p_0$  la pression standard.

La surtension d'activation peut être définie par [11] :

$$V_{act} = \xi_1 + \xi_2 T + \xi_3 T lnc_{O_2} + \xi_4 ln(i)$$
(1.6)

où *i* est la densité de courant traversant la cellule (en  $A/cm^2$ ),  $c_{O_2}$  est la concentration en oxygène ( $mole/cm^3$ ),  $\xi_{1,3,4}$  sont des paramètres semi-empiriques qui peuvent être calculés [12] ou identifiés empiriquement [13].

Leur valeur a une grande influence sur la modélisation de la tension de la cellule [14]. La valeur de  $\xi_2$  se calcule en utilisant la formule ci-dessous :

$$\xi_2 = 0.00286 + 0.0002 ln \left( A_{cell} \right) + 4.310^{-5} ln \left( c_{H_2} \right) \tag{1.7}$$

où  $c_{H_2}$  est la concentration en hydrogène, et  $A_{cell}$  est l'aire de la surface active de la cellule. La surtension ohmique peut être définie comme suit :

$$V_{ohm} = (R_m + r) i \tag{1.8}$$

où r est la résistance électriques des différents composants de la cellule : plaques collectrices, plaques bipolaires par exemple, et  $R_m$  est la résistance de la membrane au passage des protons (en  $\Omega$ ).  $R_m$  dépend de la teneur en eau de la membrane. On peut calculer la valeur de  $R_m$  de la façon suivante [15] :

$$R_m = \frac{e_m}{A_{cell} \left(0.00514\lambda - 0.00326\right)} exp\left[1268\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{303}\right)\right]$$
(1.9)

où  $e_m$  est l'épaisseur de la membrane, et  $\lambda$  la teneur en eau de la membrane.

La surtension de concentration est définie comme suit :

$$V_{conc} = -Bln\left(\frac{i}{i_{max}}\right) \tag{1.10}$$

où B est un coefficient semi-empirique (en V) et  $i_{max}$  est la densité de courant maximale qui peut traverser la membrane (en  $A/cm^2$ ).

### 1.4.2 Les flux d'eau dans une PEMFC

La gestion de l'eau est un des trois facteurs ayant un impact important sur les dégradations des performances et des composants de la PEMFC (voir partie Fautes et Dégradations).

La teneur en eau et la bonne distribution de celle-ci dans la membrane est un élément essentiel pour obtenir de bonnes performances. En effet, la conductivité protonique de la membrane dépend de la quantité d'eau présente. Dans cette membrane hydrophile, l'eau est absorbée par les groupes d'acide sulfoné (HSO3), ce qui diminue l'attraction entre les protons et les ions  $SO_3^-$  et permet aux protons de circuler librement. Il est important de connaître et de modéliser ces flux pour les optimiser.

L'eau dans la pile est introduite de deux façons : il y a production d'eau à la cathode par réduction de l'oxygène, et injection d'eau par humidification des gaz réactifs.

A l'intérieur de la membrane, elle circule grâce à deux phénomènes :

- L'eau circule à travers la membrane par électroosmose : les protons se déplaçant de l'anode vers la cathode sous forme hydratée entraînent avec eux un nombre de molécules d'eau  $n_{drag}$  [15],
- De la cathode vers l'anode, l'eau se déplace sous l'influence d'un gradient de concentration en eau entre les deux électrodes. En effet, l'eau étant produite à la cathode, la concentration en eau est plus élevée qu'au niveau de l'anode, ce qui entraîne un phénomène de diffusion de l'eau de la cathode vers l'anode.

Les modèles physiques décrivant l'eau dans la pile sont définis dans plusieurs ouvrages et publications de bases, comme [11] [15] [16] [17]. Les modèles sont basés sur les équations qui décrivent les phénomènes physiques, ce sont des modèles méchanistiques. Les équations décrivant le flux d'eau et la teneur en eau tirées de ces publications sont détaillées cidessous.

### Production d'eau à la cathode

La densité de flux molaire d'eau produite à la cathode est donnée par l'équation suivante [16]:

$$N_{H2O}^{Pro} = J_{cell}/2F \tag{1.11}$$

où  $J_{cell}$  est la densité totale de courant  $(A.m^{-1})$ .

#### Diffusion

La loi de Fick permet d'estimer la contribution diffusive au flux total d'eau dans la membrane à partir de la concentration locale  $C_w$ :

$$N_m^{Diff} = -D_m \frac{dc_w}{dz} \tag{1.12}$$

où  $N_m^{Diff}$  est la densité de flux diffusif molaire suivant l'axe Oz  $(mol.m^{-2}.s)$ ,  $-D_m$  est le coefficient de diffusion effectif de l'eau dans la membrane  $(m^2s^{-1})$  et  $c_w$  est la concentration locale en eau dans la membrane  $(mol.m^{-3})$ .

Avec  $D_m$  donné par l'équation 1.13 comme étant indépendant de la teneur en eau de la membrane [18], ou par l'équation 1.14 [10] qui prend en compte la teneur en eau de la membrane :

$$D_m = D_m(303)exp\left[2416\left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T}\right)\right]$$
(1.13)

Où  $D_m(303) = 1.10^{-9} m^2 . s^{-1}$  est le coefficient de diffusion à  $T = 303 \ K$ 

$$D_m = D_m(\lambda_a) exp\left[2416\left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T}\right)\right]$$
(1.14)

où 
$$D_m(\lambda_a) = \begin{cases} 10^{-6}, & \lambda_a < 2\\ 10^{-6}(1+2(\lambda_a-2)), & 2 \leq \lambda_a \leq 3\\ 10^{-6}(3-1.67(\lambda_a-3)), & 3 < \lambda_a < 4.5\\ 1.2510^{-6}, & \lambda_a \ge 4.5 \end{cases}$$

La teneur en eau de la membrane  $\lambda$ , est donnée par le rapport entre le nombre de molécules d'eau par nombre de sites  $SO_3^-H^+$  [15]. On peut exprimer la valeur de  $\lambda$  en fonction de la concentration locale en eau :

$$\lambda = \frac{EW}{\rho_{dry}} C_w \tag{1.15}$$

où  $\lambda$  est la teneur en eau de la membrane, EW la masse molaire,  $\rho_{dry}$  la masse volumique de la membrane sèche. Pour le Nafion<sup>®</sup> :

- $EW = 1100 \ g.mol^{-1}$
- $\rho_{dry} = 2020.10^3 \ g.m^{-3}$

Des deux équations précédentes, on peut déduire :

$$N_m^{Diff} = -D_m \frac{EW}{\rho_{dry}} \frac{d\lambda}{dz}$$
(1.16)

Avec l'axe Oz dans le sens de l'épaisseur de la membrane  $e_m$  et l'hypothèse d'homogénéité de la teneur en eau de la membrane selon les axes Ox et Oy :

$$N_m^{Diff} = -D_m \frac{EW}{\rho_{dry}} \frac{\lambda_c - \lambda_a}{e_m}$$
(1.17)

### Electro-osmose

Les auteurs de [16] donnent l'expression du flux électroosmotique qui est lié à la densité de courant électrique produite par la pile :

$$N_m^{osmotic} = n_{drag} \frac{J_{cell}}{F} \tag{1.18}$$

où  $N_m^{osmotic}$  est la densité de flux électro-osmotique de l'eau à travers la membrane  $(mol.m^{-2}.s)$ 

$$et \ n_{drag} = \lambda . n_{drag}^o \tag{1.19}$$

où  $n_{drag}^o$  est le coefficient de transport électro-osmotique = 2.5/22

### Densité totale d'eau dans la membrane

La densité de flux d'eau total s'exprime donc comme la somme des deux densités de flux diffusif et électro-osmotique.

$$N_m^{tot} = N_m^{osmotic} + N_m^{Diff} \tag{1.20}$$

$$N_m^{tot} = \lambda . n_{drag}^o \frac{J_{cell}}{F} - D_m \frac{EW}{\rho_{dry}} \frac{d\lambda}{dz}$$
(1.21)

La solution de l'équation précédente est donnée par [17] :

$$N_m^{tot} = \frac{EW n_{drag}^o J_c ell}{\rho_{dry} D_m F} \tag{1.22}$$

### La teneur en eau de la membrane

La teneur en eau de la membrane peut s'exprimer en fonction de l'activité de la vapeur d'eau (Equation 1.23 [15]), et en fonction des pressions de saturation (Equation 1.24 [19]) :

$$\lambda = 0.043 + 17.81a - 39.84a^2 + 36.0a^3 si0 < a \ge 1$$
(1.23)

où a est l'activité de la vapeur d'eau.

$$\lambda = 0.3 + 10.8 \left( p_{H_2O}/p_{sat} \right) - 16 \left( p_{H_2O}/p_{sat} \right)^2 + 14.1 \left( p_{H_2O}/p_{sat} \right)^3$$
(1.24)

où par la relation d'Antoine [20] :

$$p_{sat} = exp\left(23.1961 - \frac{3816.4}{T - 46.13}\right) \tag{1.25}$$

### Conductivité protonique de la membrane et résistance

Selon [15], la conductivité de la membrane s'exprime sous cette forme :

$$\tau(T) = exp\left[1368\left(\frac{1}{303} - \frac{1}{273 + T}\right)\right] . \tau_{30}$$
(1.26)

où

$$\tau_{30^{\circ}C} = 0.005139\lambda - 0.00326 \ pour \ \lambda > 1 \tag{1.27}$$

La résistance de la membrane peut être définie par [21] :

$$R_m = e_m / (A_m(0.00514\lambda - 0.00326)) \times exp[1268(1/T - 1/303)]$$
(1.28)

déduite de l'équation suivante [15]

$$R_m = \int_0^{e_m} \frac{1}{\tau} \,\mathrm{d}z \tag{1.29}$$

où  $R_m$  est la résistance de la membrane  $(\Omega.cm^{-2})$ ,  $e_m$  l'épaisseur de la membrane (cm),  $A_m$  l'aire de la membrane  $(cm^2)$ ,  $\tau_{30^\circ C}$  est la conductivité de la membrane à  $30^\circ C$   $(\Omega.cm^{-1})$  et  $\tau(T)$  est la conductivité de la membrane à la température T de la cellule  $(\Omega.cm^{-1})$ .

Cette relation entre la teneur en eau de la membrane et sa résistance électrique souligne le rôle d'une bonne gestion de l'eau dans l'optimisation des performances.

### 1.5 Description d'un système PàC

Pour fonctionner, une PàC a besoin d'un système composé d'auxiliaires, plus ou moins complexe, selon les applications visées. Ce système d'instrumentation comprend des capteurs, des actionneurs et des contrôleurs permettant de contrôler les conditions opératoires appliquées à la pile et forment ce que l'on appelle un *système PàC*.

Les systèmes PàCs à usage commercial utilisés dans les voitures sont relativement simples. Ils contiennent un minimum de capteurs et d'actionneurs pour des raisons techniques et économiques.

Les systèmes PàCs pour la recherche sont plus complexes et plus coûteux. De nombreux capteurs sont utilisés comme des systèmes de mesure d'impédance-métrie, parfois pour chaque cellule présente dans une PàC. Ils incluent aussi des mesures de pression et de débits, en amont et en aval de la PàC 1.9.



FIGURE 1.9 – Schéma global du système PàC du  $LE^2P$ 

Les différents éléments d'un système PàC ont pour objectif :

- l'alimentation en gaz réactifs,
- la gestion de l'eau,
- la gestion de la chaleur,

- le conditionnement de la puissance produite par la PàC,
- et la supervision et le contrôle des conditions opératoires.

### 1.5.1 Alimentation en gaz réactifs

La circulation des gaz réactifs est un paramètre important, autant que l'admission de carburant dans un moteur thermique. Les débits de gaz sont contrôlés pour répondre aux besoins de la pile en réactifs. Soit S la surstœchiométrie du gaz réactif, étant défini comme le rapport entre le débit de gaz injecté sur le débit de gaz nécessaire :

$$S = \frac{\dot{m}_{entrant}}{\dot{m}_{consomm\acute{e}}} \tag{1.30}$$

La valeur de la surtœchiométrie des gaz est un paramètre important à contrôler car il influence les performances de la pile.

La pression des gaz réactifs à l'intérieur de la pile est un autre facteur important dans l'optimisation des performances qui peut être contrôlé grâce à des régulateurs de contre-pression.

### 1.5.2 Gestion de l'eau

L'eau produite à la cathode ne permet pas toujours d'hydrater correctement la membrane. Une humidification des gaz entrant peut améliorer l'hydratation de la membrane, ce qui est essentiel pour un bon fonctionnement de la PEMFC. Avant d'être envoyés au cœur de pile les gaz traversent des ballons d'humidification. La régulation de la température de l'eau dans les ballons d'humidification permet de contrôler le taux d'humidification du gaz. Notons qu'une bonne gestion de l'eau dans une PEMFC est une tâche aussi important que difficile à mettre en place. Un taux d'humidification de la membrane adéquat est difficile à atteindre et les humidités relatives (HR) des gaz doivent être finement réglées.

### 1.5.3 Gestion de la chaleur

La température de fonctionnement optimale d'une PEMFC est comprise entre 60 et 80  $^{o}C$ . La température dans la PEMFC doit être contrôlée pour atteindre ces valeurs. Selon l'installation, les contrôleurs en température pilotent soit des cartouches chauffantes et des ventilateurs, soit un système de chauffage/refroidissement par circulation d'un fluide caloporteur (souvent de l'eau). En plus du contrôle de la température de la PàC, les températures des gaz entrants peuvent être régulées pour assurer de meilleures conditions de fonctionnement. Ce contrôle est important notamment pour des soucis de gradient de température. Si les températures de gaz et de PàC sont mal choisies, on des phénomènes de condensation ou d'évaporation peuvent se produire et compliquer la gestion de l'eau.

### 1.5.4 Transformation de la puissance produite

La puissance électrique produite par une PàC doit être conditionnée pour être utilisée. Dans certaines installations de recherche une charge électronique est connectée à la PàC pour simuler une charge réelle. Dans les installations commerciales, des convertisseurs DC/DC ou DC/AC sont nécessaires pour adapter la tension de sortie à la charge utilisée. Il est à noter que dans les systèmes PàC commerciaux, tous les auxiliaires sont alimentés par la PàC elle-même. En amont de chaque auxiliaire se trouve un convertisseur DC/DC pour obtenir une tension d'alimentation adaptée à celui-ci. L'électronique de puissance tient une place importante dans la conception d'un système PàC.

### 1.5.5 Supervision et contrôle

Les systèmes PàCs regroupent des capteurs, des actionneurs et d'autres éléments qui doivent être pilotés simultanément pour permettre un fonctionnement sûr et optimal. Pour contrôler tous ces éléments, un système de supervision et de contrôle est mis en place. Il permet d'une part de surveiller les grandeurs importantes (températures, pressions, courant par exemple), et d'autre part d'imposer les conditions opératoires voulues. Cet organe est accompagné d'une interface homme/machine.

### 1.6 Dégradations

Comme tout système, les PEMFC sont susceptibles de subir des fautes et des dégradations. De par leur complexité, le nombre de fautes et de dégradations est important et fait l'objet de recherches approfondies depuis de nombreuses années.

Une PàC de type PEMFC contient des éléments qui subissent des dégradations au cours de son utilisation. Ces dégradations sont amplifiées par une mauvaise gestion des conditions opératoires [22]. Dans différents ouvrages, les dégradations sont classées en deux catégories, les dégradations qui causent le vieillissement de la pile et celles qui sont catastrophiques, c'est-à-dire qui rendent la pile inutilisable. Les dégradations causant le vieillissement de la membrane ont un effet visible sur une longue période de temps. Elles diminuent la durée de vie de la membrane et aussi ses performances. Les dégradations catastrophiques provoquent un effet immédiat et la panne du système.

### 1.6.1 Dégradations de la membrane

La membrane en PFSA subit des dégradations mécaniques, thermiques et chimiques, décrites ci-dessous.

### Dégradations mécaniques

Sur le plan mécanique, une membrane peut subir des dégradations diverses [23] :

- des perforations,
- des craquellements,
- des "microtrous",
- des changements de dimension [24],
- une perte de ductibilité,

pour les causes suivantes. Tout d'abord un défaut de fabrication de la membrane ou de l'AME peut conduire à ces dégradations. Ensuite, une membrane peut subir des contraintes non uniformes au cours du montage. Les surfaces de contact entre l'AME et les joints et les plaques bipolaires sont différentes ce qui peut induire un stress mécanique qui peut altérer la membrane.

#### Les cycles d'humidification

La membrane peut être contrainte aussi par un stress mécanique causé par le changement de son taux d'humidification. Un assèchement de la membrane provoque sa contraction et une très haute hydratation provoque son gonflement. Lorsque la membrane est assemblée dans une PàC elle subit des contraintes mécaniques dues au serrage des plaques bipolaires. Les contractions/gonflements sont alors contraints par le montage, la membrane se gondole. Des cycles d'hydratation/ déshydratation répétés conduisent à un amincissement de la membrane et à des craquellements jusqu'à la rupture [25].

### La contamination

Les joints et les catalyseurs peuvent se dégrader et leurs particules migrent dans la membrane. Ce phénomène modifie les propriétés élastiques de la membrane, on dit qu'elle perd en ductilité  $^2$ .

### Le crossover

Le passage des gaz au travers de la membrane s'appelle le phénomène de *crossover*. Les gaz se déplacent entre l'anode et la cathode (de l'anode vers la cathode, ou de la cathode vers l'anode) soit par diffusion [26], soit par de petits trous dans la membrane. La réaction entre l'hydrogène et l'oxygène est alors incontrôlée et produit de la chaleur, des points chauds. Ces points chauds fragilisent la membrane, ce qui facilite la création de trous etc. Ces dégradations sont irréversibles et réduisent fortement la durée de vie de la membrane.

### Dégradations chimiques

#### Contamination par des radicaux

Le phénomène de crossover provoque aussi la production de radicaux peroxyde  $(HO^{\cdot})$  et hydroperoxyde  $(HOO^{\cdot})$  pendant la réaction direct entre hydrogène et oxygène. Ces radicaux attaquent la membrane et les catalyseurs.

#### Contamination par des cations

La membrane peut être contaminée par des cations provenant de la corrosion des éléments de la PàC, des impuretés dans les gaz ou dans les ballons d'humidification. Ces cations ont une affinité avec le PFSA plus grande que les ions  $H^+$ . La conductivité protonique de la membrane est diminuée, ainsi que le flux d'eau, ce qui induit un assèchement de la membrane et les dégradations associées.

#### Contamination par des ions métalliques

La corrosion des plaques bipolaires produit des ions métalliques par exemple  $Fe^{2+}$  et  $Cu^{2+}$ , qui sont des catalyseurs des réactions produisant les radicaux précédemment cités. Cette contamination accélère l'amincissement de la membrane et favorise l'apparition de trous dans celle-ci.

<sup>2.</sup> Ductilité : la capacité d'un matériau à se déformer plastiquement sans se rompre

### Dégradations thermiques

Les piles de type PEMFC basse température fonctionnent entre 60 et  $80^{\circ}C$ . Cependant l'objectif d'une commercialisation pour les applications portables et automobiles oriente la recherche pour atteindre des conditions de fonctionnement entre -40 et plus de  $100^{\circ}C$ . Les PEMFC actuelles ne satisfont pas encore ces conditions.

A haute température (plus de  $80^{\circ}C$ ), on dépasse la température de transition vitreuse du PFSA. Les dégradations sont catastrophiques et bien sûr irréversibles.

A basse température (moins de  $0^{\circ}C$ ), la conductivité protonique, l'imperméabilité aux gaz et la robustesse mécanique de la membrane diminuent. Ces dégradations sont réversibles et aucune dégradation catastrophique n'est observée. Cependant, la formation et la fonte répétées de cristaux de glace provoque un changement de volume de l'eau et diminuent considérablement la durée de vie de la membrane.

### 1.6.2 Dégradation des catalyseurs et des supports de catalyseurs

La couche catalytique (couche active) est composée de particules de platine dispersées sur du carbone. Ces deux éléments font l'objet de dégradations.

La dégradation du Pt est un mécanisme chimique complexe [27]. Trois phénomènes majeurs sont en cause dans la dégradation de la couche catalytique. Dans un premier temps, la couche catalytique peut être contaminée par des impuretés venant des gaz réactifs ou des autres éléments de la PàC. Dans un second temps l'activité de la couche catalytique peut être réduite à cause de la migration des particules de Pt sur la GDL, ou la dissolution du Pt dans l'électrolyte. Le troisième phénomène, qui est aussi irréversible est l'agglomération des particules de Pt. Pour une grande surface de sites de réaction, les particules de Pt sont de l'ordre de grandeur du nanomètre et sont uniformément dispersées. Au fur et à mesure du fonctionnement de la PàC les particules de platine s'agglomèrent et forment de plus grosses particules. La surface active s'en trouve diminuée. Tous ces phénomènes sont accentués par l'épuisement des réactifs, les cycles d'utilisation et le vieillissement de la PàC.

Le carbone de la couche-support du Pt réagit avec l'eau ce qui entraîne une corrosion du support. Ce phénomène arrive lorsqu'il y a une hétérogénéité dans la répartition des gaz réactifs, observé notamment lors des phases de démarrage/arrêt, des cycles de fonctionnement, d'épuisement des réactifs ou de mauvaise gestion de l'eau.

A la cathode, le fait que l'eau se forme sur les particules de platine rend la couche catalytique très exposée aux dégradations. Ces dégradations se traduisent par l'amincissement et l'appauvrissement de cette couche. La formation d'eau accélère le processus d'agglomération des particules de platine. Ainsi il a été observé que lorsque l'humidité relative des gaz augmente, la taille des particules de platine augmente aussi [28] [27]. Le transport de l'eau aide la migration des particules de platine et de la couche de carbone support. Ces particules peuvent migrer dans la membrane et l'altérer.

### 1.6.3 Dégradations des couches de diffusion

Les couches de diffusions sont faites en papier ou en tissu de carbone. Avec le vieillissement de la PàC, la GDL perd de son caractère hydrophobe. Elle subit aussi les attaques chimiques dues à la dégradation de la membrane et des joints.

### 1.6.4 Dégradations des plaques bipolaires

La corrosion des plaques bipolaires est une dégradation irréversible des PEMFC. Cette corrosion a deux effets dévastateurs sur la durée de vie des PàCs. Dans un premier temps, la matière oxydée crée un film à l'interface entre la plaque bipolaire et l'AME. Ce film augmente la résistance de contact entre ces deux éléments. La PàC présente alors une forte résistance électrique et des performances diminuées.

La corrosion a aussi un un effet sur les éléments internes de la PàC. Les ions produits par la corrosion peuvent contaminer la membrane et le catalyseur.

### 1.6.5 Dégradations de la tension

Toutes les dégradations citées ci-dessus sont des dégradations irréversibles. Elles causent une dégradation des performances à moyen et long termes. Lorsque la membrane est endommagée, sa conductivité protonique l'est aussi, ce qui diminue les performances électriques de la pile. Les dégradations de la couche catalytique font diminuer la vitesse de réaction.

A court terme, la tension d'une PEMFC peut se trouver dégradée par un mauvais choix de conditions opératoires, notamment une mauvaise gestion de l'eau, ou un épuisement des gaz. Cette dégradation est temporaire et réversible.

### 1.7 Causes des dégradations

Les dégradations exposées précédemment sont inévitables. Elles font partie de l'usure, du vieillissement de la PEMFC. Cependant, ces dégradations peuvent être amplifiés par certains facteurs, ce qui entraîne un vieillissement prématuré de la pile.

On peut dénombrer deux principaux facteurs pouvant accélérer le vieillissement d'une PEMFC [29]

- 1. la mauvaise gestion de l'eau,
- 2. et les cycles de fonctionnement.

### 1.7.1 Mauvaise gestion de l'eau

Les dégradations dues à une mauvaise gestion de l'eau sont importantes [30] [28]. Elles sont liées à la formation, la rétention, l'accumulation, et le transport de l'eau dans la PEMFC. Les problèmes qui en résultent sont :

- la perte de surface active des catalyseurs et la dégradation des supports de catalyseur,
- le gonflement de la membrane [24],
- la formation de glace,

- la formation de points chauds,
- la corrosion,
- et la contamination.

La mauvaise gestion de l'eau entraîne un vieillissement prématuré de la pile par des dégradations physiques. A court-terme, une mauvaise gestion de l'eau dans la PEMFC entraîne des pertes de performances électriques.

L'état d'humidification d'une PEMFC peut être qualifié d'assèché ou engorgé.

### L'assèchement

Lorsqu'il y a trop peu d'eau dans la membrane, sa conductivité protonique est très faible. Le passage des protons est limité et le courant débité par la pile diminue. Les performances sont altérées. Des conditions sévères d'assèchement conduisent à des dégradations irréversibles de la membrane en moins de 100 s : la membrane peut se déchirer.

La rapidité de l'assèchement de la membrane est due aux propriétés intrinsèques du Nafion<sup>®</sup>. En effet, le temps de sorption est d'un ordre de grandeur plus grand que le temps nécessaire à la désorption.

#### L'engorgement

Dans le cas où l'eau dans la cellule est présente sous forme vapeur, plus la cellule sera hydratée et meilleures sont les performances. Dans le cas où cette eau se condense, il y a possibilité d'engorgement des canaux : l'eau bloque l'arrivée des gaz réactifs aux zones catalytiques en bouchant les pores de la GDL.

Comme le décrivent Foucquet et al. [31], l'engorgement se produit en deux étapes :

- les gouttes d'eau s'accumulent et bouchent sporadiquement les pores de la GDL tandis que la tension chute très lentement,
- après plusieurs minutes, les gouttes forment des agrégats (slugs) et bloquent les canaux d'arrivée de gaz, entravant la diffusion des gaz réactifs aux catalyseurs et induisant à son tour une chute rapide la tension.

Il est donc important de pouvoir détecter l'engorgement dès la première étape qui peut durer plusieurs minutes, au lieu de quelques secondes pour la deuxième.

La surhydratation de la membrane cause aussi son gonflement et son gondolement provoque l'obturation des canaux, et la perte de performances par épuisement des gaz.

Un équilibre doit être trouvé entre une quantité limitée d'eau pour limiter les dégradations et une quantité suffisante d'eau pour optimiser la conductivité protonique de la membrane (Equation 1.26).

#### Influence des paramètres sur l'état d'hydratation d'une PEMFC

L'état hydrique d'une PEMFC peut être influencée par différents paramètres dont les principaux sont : les températures, les pressions et les débits.

La température de la cellule est un élément déterminant dans la teneur en eau de la membrane de par les phénomènes d'évaporation et de condensation.

Les essais conduits par Barbir *et al.* [32] montrent que pour des températures de pile  $T_{cell}$  indépendantes des températures d'humidification  $T_{hum}$  des gaz réactifs que : Pour  $T_{cell} > T_{hum}$ , on observe une évaporation de l'eau contenue dans le gaz entrant. La membrane va s'assécher malgré une bonne hydratation de la cathode (due à la production d'eau à cet endroit). Pour  $T_{cell} < T_{hum}$ , on observe alors un engorgement de la membrane car l'eau sous forme vapeur contenue dans les gaz va se condenser et provoquer l'engorgement de la PàC.

Une différence de pression entre l'anode et la cathode peut aider à réguler le flux d'eau dans la membrane. A courant élevé, le flux électroosmotique est supérieur au flux diffusif, pour contrebalancer cette tendance qui risque de conduire à un engorgement de la cathode, on peut mettre en place en AWR (Anode Water Removal). Comme le décrivent Yousfi *et al.* [33], le AWR consiste à appliquer une pression plus élevée à la cathode qu'à l'anode. Le flux d'eau est dès lors plus important de la cathode vers l'anode, l'engorgement de la cathode est évité et les performances de la cellule sont améliorées. On peut imaginer appliquer une pression plus grande à l'anode dans le cas d'un flux diffusif supérieur à un flux électroosmotique. Cependant, une trop grande différence de pression peut dégrader la membrane (par déchirement), surtout si elle est fine. Une différence de pression maximale est fixée à 500mbar. Cette différence de pression peut augmenter le risque de crossover et donc de dégradations.

Les débits des réactifs peuvent agir sur l'hydratation de la membrane. En effet des petits débits peuvent permettre à l'eau contenue dans les gaz d'être absorbée par la membrane, et l'on aura une faible évacuation de cette eau : nous allons vers une meilleure hydratation, et dans un cas extrême vers un engorgement. Des grands débits évacuent l'eau des canaux de distributions, évitant ainsi l'engorgement. Cependant lorsque les gaz sont humidifiés, les débits élevés ne permettent pas à cette eau d'être absorbée par la membrane : on assèche la membrane.

### 1.7.2 Cycles de fonctionnement

Les régimes transitoires sont néfastes pour la durée de vie de la PEMFC et sont provoqués par des changements de conditions opératoires. Ces changements sont des variations de la charge, de la température, de la surstœchiométrie, de l'humidification ou de la pression.

Les cycles de fonctionnement sont composés de procédures de démarrage/arrêt, de variations de sollicitation de la charge et de fonctionnement en circuit ouvert (OCV). Ces changements induisent des régimes transitoires à l'intérieur de la pile. Pendant ces états transitoires la pile fait face à des hétérogénéités en température et concentration de gaz ce qui cause une mauvaise gestion de l'eau, un épuisement des gaz et des pertes de performances. Les cycles de fonctionnement accélèrent les dégradations de la couche catalytique, la corrosion du carbone, la formation de trous dans la membrane et le phénomène de crossover.

Les sollicitations de la charge ont un grand impact sur ces dégradations, spécialement les échelons en tension ou en courant. Pour minimiser les dégradations, la profondeur des échelons doit être basse et la durée des échelons doit être suffisamment importante.

Pour éviter l'accélération des dégradations, il faut éviter :

- l'épuisement des gaz réactifs,
- les cycles de charge,
- les phases de démarrage/arrêt,
- l'utilisation en circuit ouvert (OCV),
- les purges excessives,
- les cycles d'humidité,
- et les cycles de gel/dégel.

### 1.7.3 Dégradations liées aux auxiliaires

Les composants d'un système PàC sont des éléments électroniques, électriques et mécaniques qui peuvent être sujets à des pannes ou à des dysfonctionnements. Il est important de connaître les pannes éventuelles afin d'assurer la sûreté et une fiabilité du système même lors de l'apparition de fautes.

Le dysfonctionnement d'un élément du système peut entraîner un facteur de dégradations. Par exemple un défaut dans le système d'alimentation en gaz peut conduire à un épuisement des réactifs ou à une mauvaise gestion de l'eau, et entraîner les dégradations associées. Une mauvaise régulation en température peut provoquer une mauvaise gestion de l'eau, ou des hétérogénéités en température. Un mauvais contrôle de la pression anodique et cathodique peut créer un stress mécanique et déchirer la membrane.

### Conclusion

Les dégradations des composants d'une PEMFC sont inévitables tout au long de son utilisation. Ce phénomène s'apparente à de l'usure, il s'agit de vieillissement. Ce vieillissement peut être accéléré et les dégradations accentuées à cause de mauvaises conditions opératoires ou de mauvais fonctionnements du système. Ces mauvaises manipulations ou problèmes matériels sont appelés des fautes. Pour optimiser la durée de vie des PEMFC, il faut éviter ces fautes. Lorsque des fautes apparaissent, il faut être en mesure de les détecter avant l'apparition de défaillances, c'est-à-dire de pannes du système, et avant propagation de la faute (on parle de propagation de la faute lorsqu'une faute en engendre une autre). Par exemple, une faute dans le système d'alimentation en air peut se propager en entrainant une faute de gestion de l'eau, et les dégradations observés résultent des deux fautes. Le diagnostic des fautes est une étape préliminaire à la mise en place d'une stratégie de recouvrement, de gestion de la faute.

## Chapitre 2

# Diagnostic des fautes appliqué aux PEMFCs

### Sommaire

<b>2.1</b>	Géné	éralités sur le diagnostic	<b>54</b>
2.2	Les o	outils de diagnostic	55
	2.2.1	Les mesures directes	55
	2.2.2	Les outils élaborés	56
2.3	Les 1	méthodes de diagnostic	57
	2.3.1	Le diagnostic basé modèle	57
	2.3.2	Le diagnostic basé signal	60
2.4	Etat	de l'art du diagnostic pour les PEMFCs	61
	2.4.1	Diagnostic de fautes PàC	61
	2.4.2	Diagnostic de fautes des auxiliaires	65

### Introduction

L ES FAUTES sont des causes importantes des dégradations des composants et des performances des PEMFCs pouvant résulter de problèmes matériels ou des mauvaises conditions opératoires qui ont une influence néfaste sur le fonctionnement du système. Pour les systèmes PàC les fautes sont classées en deux catégories : les fautes internes à la PàC et les fautes des auxiliaires. Qu'elles soient prévisibles ou non, les fautes doivent être détectées afin de prévenir les défaillances du système, et garantir un régime de fonctionnement stable. La méthodologie est la suivante : à partir de mesures accessibles, et à une connaissance a priori du système, la présence d'une faute est détectée, puis elle est identifiée (isolée). Cette méthodologie est appelée le *diagnostic* de la faute.

Ce Chapitre est construit comme suit : dans un premier temps les différents outils de diagnostic pour les PEMFCs sont présentés, suivis des différents types de méthodes de diagnostic et d'un état de l'art des méthodes de diagnostic présents dans la littérature.

### 2.1 Généralités sur le diagnostic

Le diagnostic a un très large champ d'applications et celui qui l'illustre le mieux est le champ médical. Le médecin constate des symptômes, qui sont des observations externes et internes faites sur le patient. Ces symptômes peuvent être observés par des mesures directes, comme la mesure du poids, du pouls, de la pression sanguine, ou au moyen d'outils plus complexes comme la radiographie, l'échographie ou l'Imagerie à Résonance Magnétique (IRM). Les connaissances a priori du corps humain, des pathologies connues et des antécédents du patient, permettent au médecin de corréler les symptômes entre eux et de diagnostiquer la pathologie. Le diagnostic est posé en vue d'un traitement pour un rétablissement dans les meilleurs délais du patient.

La démarche de diagnostic pour la recherche et l'industrie est la même que pour la médecine. L'objectif est de garantir un bon état de santé, non plus de patients mais de machines industrielles, pour améliorer la fiabilité et le rendement des installations.

Le diagnostic permet de diminuer la fréquence des opérations de maintenance qui nécessitent des arrêts machines réguliers. De plus, le diagnostic permet de détecter la faute avant la défaillance, c'est à dire avant la panne, et d'éviter des dégradations éventuelles. Le but des recherches associées au diagnostic est d'automatiser le processus de diagnostic, à partir de l'acquisition de grandeurs facilement mesurables dans l'objectif de réduire :

- le recours à l'expertise et à l'intervention des opérateurs,
- les arrêts pour maintenance,
- les pannes et les dégradations.

Les PEMFCs sont des générateurs de courant électrique, conçus respecter des contraintes de fonctionnement stable, qu'ils soient on-grid ou off-grid, en accord avec un cahier des charges. Pour les applications stationnaires, portables, comme pour les applications de transport, la maintenance manuelle se fait à intervalles réguliers. Pour garantir une fiabilité du système entre deux opérations de maintenance il est impératif que le diagnostic des fautes soit automatisé et associé à une stratégie de gestion de la faute.

Le diagnostic appliqué aux PEMFCs requiert deux grandes étapes. La première étape est la collecte et le traitement des données, obtenues à partir de *mesures directes* ou par le biais d'*outils de diagnostic élaborés*. La seconde étape est l'utilisation d'une méthode de diagnostic pour l'analyse les informations expérimentales en association avec les connaissances a priori pour détecter et isoler la faute.



FIGURE 2.1 – Les étapes du diagnostic

### 2.2 Les outils de diagnostic

Il est important de différencier les outils et les méthodes de diagnostic. Les outils de diagnostic sont des techniques de mesure, d'acquisition et de traitement des informations nécessaires à la méthode de diagnostic. En plus des mesures *directes* de grandeurs comme la température ou la tension aux bornes de la cellule, des outils de diagnostic plus complexes aident à caractériser l'état d'une PEMFC.

### 2.2.1 Les mesures directes

Les mesures *directes* utiles au diagnostic sont de manière générale toutes les grandeurs mesurables sur un système PàC. Cependant pour le diagnostic d'une faute interne à la PàC, c'est à dire l'engorgement, l'assèchement, le crossover ou l'empoisonnement, les mesures à faible coût et facilement accessibles sont : la mesure de la tension, du courant, de la pression et de la résistance.

### Mesure de la tension et du courant

La dégradation des performances est un symptôme fiable de la présence d'une faute. La mesure de la tension et du courant permettent de situer le point de fonctionnement, et d'évaluer s'il s'agit d'un fonctionnement nominal ou dégradé. De plus la tension est une image des phénomènes électrochimiques internes à la PàC. La mesure de la tension globale aux bornes d'un stack est porteuse d'informations sur son état de santé. Elle constitue un outil de diagnostic au niveau global, mais la localisation d'une faute dans un stack requiert la collecte des tensions de cellules, porteuses d'informations locales.

#### La mesure de la perte de charge

La perte de charge est mesurée via des manomètres positionnées en amont et en aval des canaux anodiques et cathodiques. La perte de charge dans un réseau de canaux est caractéristique de celui-ci et peut-être calculée grâce à la loi de Darcy (Equation 2.1). Les gouttelettes qui obstruent les canaux de distribution diminuent leur diamètre hydraulique ce qui provoque une augmentation de la chute de pression. La mesure de la perte de charge est un bon indicateur de la présence d'eau dans les canaux de distributions.

$$\Delta P = f \frac{L\rho V^2}{2D_H} \tag{2.1}$$

où  $\Delta P$  est la perte de charge (Pa), f le coefficient de frottement, L la longueur du canal (m),  $\rho$  la densité du fluide  $(kg.m^{-3})$ , V la vitesse du flux  $(m.s^{-1})$  et  $D_H$  le diamètre hydraulique du canal (m).

### La mesure de la résistance de la membrane

Expérimentalement elle est considérée comme la valeur de l'impédance de la PàC à très haute fréquence. Cette résistance est sensible aux changements d'hydratation de la membrane. Lorsque la membrane est mal hydratée, la conductivité protonique de la membrane est faible, les protons circulent difficilement et la résistance de la membrane augmente. La résistance de la membrane est liée à la teneur en eau de la membrane par l'équation 2.2, détaillée dans la Sous-Section 1.4.1.

$$R_m = \frac{e_m}{A_{cell} \left(0.00514\lambda - 0.00326\right)} exp\left[1268\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{303}\right)\right]$$
(2.2)

La mesure de cette résistance est un bon indicateur d'assèchement.

### 2.2.2 Les outils élaborés

Pour caractériser au mieux l'état d'une PEMFC, divers outils sont développés ou bien empruntés à d'autres champs disciplinaires. Ces outils de diagnostic élaborés peuvent être classés en deux catégories comme le proposent Wu et al [34] [35] : les techniques électrochimiques et les méthodes physico-chimiques.

Les techniques électrochimiques les plus utilisées sont :

- la courbe de polarisation,
- l'interruption de courant,
- l'impulsion de courant,
- et la spectroscopie d'impédance (*EIS, Electrochemical Impedance Spectroscopy*) (voir paragraphe 2.2.2).

Les méthodes physico-chimiques sont la chromatographie gazeuse, ainsi que les méthodes d'imagerie décrites par Bazylak et al [36] pour l'observation de la formation d'eau liquide telles que :

- l'imagerie neutronique,
- l'imagerie par résonance magnétique (IRM),
- l'imagerie directe grâce aux design de PàCs transparentes,
- l'imagerie par infra-rouge (IR).

D'autres outils comme la cartographie des densités de courant et des températures sont utilisés pour le diagnostic et nécessitent soit un déploiement important de capteurs, soit l'implémentation d'un modèle multi-dimensionnel décrivant les paramètres locaux.

### La spectroscopie d'impédance

La spectroscopie d'impédance est un outil largement utilisé pour le diagnostic des fautes dans le domaine des PEMFCs, comme détaillé dans le travail de Yuan et al [37]. La spectroscopie d'impédance est une technique électrochimique qui permet de mesurer la capacité d'un système à empêcher le passage du courant électrique.

Cette technique repose sur l'application d'une perturbation sinusoïdale aux bornes d'une PEMFC. Lorsque la perturbation est un signal en courant on parle d'EIS galvanométrique, lorsque la perturbation est un signal en tension, on parle d'EIS potentiostatique. La perturbation est d'amplitude et de fréquence connues. En EIS galvanométrique, il est conseillé d'appliquer une perturbation d'amplitude égale à 10 % de la valeur du courant de charge. Les réponses à la perturbation de la pile en amplitude et en phase sont mesurées pour plusieurs fréquences et reportées sur des graphes de Nyquist et de Bode pour être exploités.

### 2.3 Les méthodes de diagnostic

L'objectif de la méthode de diagnostic est de différencier clairement un comportement sans faute (autrement dit un comportement sain) d'un comportement avec fautes.

De nombreuses méthodes de diagnostic sont présentées dans la littérature, elles peuvent être classées en deux types : les méthodes de diagnostic basées modèle, et les méthodes de diagnostic basées signal. Les méthodes de diagnostic basées modèle mettent en place l'estimation de paramètres et dans la plupart des cas utilisent le principe de redondance. Les méthodes de diagnostic basés signal n'utilisent pas de modèle, elles exploitent uniquement les informations contenues dans les données collectées par les outils de diagnostic.

### 2.3.1 Le diagnostic basé modèle

Le diagnostic basé modèle utilise le principe de redondance (duplicité de l'information). La redondance peut-être physique, ou analytique. La redondance physique consiste au déploiement de différents moyens d'acquisition de l'information, comme par exemple la multiplication des capteurs pour s'assurer du bon fonctionnement d'un composant du système. La redondance analytique quant à elle ne nécessite pas d'installation de matériel supplémentaire : c'est un modèle (dit de référence) qui reproduit le comportement du composant, créant ainsi une duplicité de l'information.

Le modèle de référence décrit le comportement d'un système sain. La comparaison entre les grandeurs estimées par le modèle et les grandeurs réelles (grandeurs mesurées par des capteurs installés sur le système) génère un résidu. Lorsque le résidu dépasse un seuil de tolérance défini à partir de connaissances a priori, un symptôme est détecté. Par la suite, la combinaison des symptômes et des connaissances a priori permet l'isolation de la faute comme explicité dans la Figure 2.2.



FIGURE 2.2 – Principe de fonctionnement d'un diagnostic basé sur les résidus

L'identification du seuil de tolérance est une étape importante qui conditionne l'efficacité de la méthode de diagnostic. La valeur du seuil doit tenir compte des erreurs de modélisation et des incertitudes de mesures. Le seuil peut être fixé par une méthode essais/erreurs, ou comme pour Escobet et al, il peut être adaptatif en fonction des entrées du système [38].

Il y a autant de méthodes de diagnostic basées modèle que de modèles différents. De nombreux modèles de PEMFC sont présents dans la littérature, Cheddie et al [39] présentent un état de l'art et une comparaison des différents modèles jusqu'à 2005. Les modèles peuvent être classés comme suit selon Petrone et al [40] :

- 1. modèles analytiques, aussi appelés modèles de connaissance, modèles mécanistiques ou modèles *boîte-blanche*,
- 2. modèles hybrides aussi appelés modèles boîte-grise,
- 3. et modèles empiriques, comportementaux ou systémiques, aussi appelés modèles *boîte-noire*.

### Modèles analytiques

Les modèles analytiques sont composés d'équations algébriques décrivant les phénomènes mis en jeu au sein du système. Ces phénomènes sont nombreux et complexes, ce qui implique l'implémentation de nombreuses équations, thermiques, chimiques et électriques. De très nombreux modèles analytiques ont été développés dans la littérature dont les plus connus par Springer et al [15], Bernardi et al [41], Amphlett et al [11], Okada et al [16], Mann et al [12] et Ramousse et al [17]. Saadi et al présentent une comparaison de différents modèles analytiques statiques de PEMFC [42].

Les modèles analytiques sont très précis mais leur utilisation nécessite une capacité de calcul élevée, et le temps de calcul associé ne permet pas toujours une estimation en ligne.

### Modèles hybrides

Les modèles analytiques peuvent être difficiles à construire, certains phénomènes sont difficiles à appréhender et les équations doivent être adaptées. L'introduction de paramètres empiriques ou semi-empiriques dans les équations algébriques facilite l'identification d'un modèle précis et adapté au système étudié. Ces paramètres empiriques sont estimés grâce à des mesures expérimentales.

Les modèles équivalents électriques sont le plus souvent des modèles hybrides. Ils sont composés d'équations physiques et électrochimiques, et des paramètres empiriques sont estimés grâce à des mesures d'impédance-métrie.

L'estimation de la valeur des paramètres peut être utilisée comme méthode de diagnostic : Fouquet et al [31] utilisent les paramètres empiriques d'un modèle d'impédance pour diagnostiquer les fautes de gestion de l'eau dans la PEMFC.

### Modèles empiriques

Un modèle empirique est identifié à partir de données expérimentales. Les équations qui le composent n'ont pas de signification physique. Pour la construction de ces modèles, la connaissance du comportement du système n'est pas indispensable, même si elle est utile au choix de la structure du modèle. La précision du modèle ne repose que sur la qualité et la richesse des bases de données utilisées pour l'identifier.

L'identification d'un modèle empirique consiste en l'estimation des paramètres apparaissant dans les relations entre les entrées et les sorties du système à modéliser à partir d'un algorithme d'optimisation.

Les modèles empiriques ont l'avantage d'être plus rapides en temps d'exécution que les modèles analytiques. Un modèle empirique ne peut être adapté pour décrire un système différent de celui pour lequel il a été identifié : ses paramètres doivent être réestimés, ajustés au comportement du système différent. Les Réseaux de Neurones (RN) peuvent être utilisés comme modèles empiriques.

#### Discussion

La redondance analytique demande une grande connaissance des composants à modéliser et des différents modèles à utiliser. La précision du modèle conditionne l'efficacité de la méthode de diagnostic basé modèle et la frontière entre un état sain et un état avec faute est fixée empiriquement sur la base d'une expertise des opérateurs. L'application d'une méthode mise au point pour un système PàC sur un autre système impose la réidentification des modèles et un réajustement du seuil de tolérance.

### 2.3.2 Le diagnostic basé signal

Une autre catégorie de méthodes de diagnostic n'utilise pas de redondance. La différenciation entre un état sain et un état dégradé est établie uniquement à partir de signaux mesurables, sans aucun modèle ni connaissance du comportement du système. On peut classer les méthodes de diagnostic basé signaux en 3 catégories selon Zheng et al [43] :

- 1. l'intelligence artificielle,
- 2. les méthodes statistiques,
- 3. et le traitement de signaux.

#### Intelligence artificielle

Très utilisées pour la reconnaissance de formes, les méthodes à base d'Intelligence Artificielle (AI, Artifial Intelligence) font preuve d'une grande précision. Elles ne requièrent pas de connaissance approfondie du système étudié, et sont efficaces pour déterminer les motifs relatifs à la présence d'une faute et pour les classer : ce sont des classifieurs. La logique floue (FL, Fuzzy Logic) et les RN relèvent aussi de l'intelligence artificielle.

### Méthodes statistiques

Les méthodes statistiques sont aussi des méthodes de classification, qui reposent sur des analyses statistiques multivariées.

A l'heure actuelle, les recherches sur le diagnostic appliqué aux PEMFCs s'orientent vers l'étude de nouveaux indicateurs de fautes. Dans ce but une quantité importante de données est acquise, par mesures directes, par EIS ou par cartographie des paramètres locaux. Le nombre considérable de données entrave le *tri* manuel des mesures pertinentes et requiert des techniques de réduction de dimensions. L'objectif est de déterminer les composantes d'un espace de représentation réduit, plus adapté à la classification des données et le diagnostic des fautes.

La réduction de dimension par Analyse de la Composantes Principales (*PCA*, *Principal Composant Analysis*) est une méthode très utilisée. Elle transforme des variables corrélées en composantes décorrélées entre elles. Ceci permet de concentrer l'information dans un jeu de composantes, qui sont moins nombreuses que les variables de départ. Un espace de représentation des données est ainsi défini.

L'Analyse Discriminante de Fisher (*FDA*, *Fisher Discriminant Analysis*) est une autre méthode de réduction de dimension. L'ADF détermine des combinaisons linéaires de variables qui conduisent à la meilleure discrimination des classes : les individus de même classe sont les plus proches possibles, les individus de classes différentes sont les plus éloignés possibles. Cette méthode nécessite en amont un étiquetage des données, ce qui s'apparente à un apprentissage supervisé. L'ADF permet la détection et l'isolation de fautes.

Les Réseaux Bayésiens (RB) sont utilisés en classification de données. Ce sont des modèles graphiques probabilistes, constitués de plusieurs couches. Les couches sont reliées par des relations de cause à effet probabilistes. La structure d'un RB est déterminée par une expertise humaine et les tables de probabilités sont calculées grâce aux données expérimentales. La construction d'un RB nécessite une importante base de données.

#### Traitement de signaux

Les méthodes de traitement de signaux permettent d'extraire des caractéristiques supplémentaires des signaux.

La Transformée de Fourier Rapide (*FFT*, *Fast Fourier Transform*), transforme des données discrètes du domaine temporel dans le domaine fréquentiel. Les informations recueillies sont le gain et la phase du signal pour chaque valeur de fréquence. Ces caractéristiques sont porteuses d'informations, non disponibles sur des données dans le domaine temporel.

Contrairement à la FFT dont le domaine d'application se limite aux signaux stationnaires ou périodiques, la Transformée en Ondelettes (*WT, Wavelet Transform*), est applicable aux signaux transitoires. Elle décompose les signaux en une superposition d'ondelettes. L'analyse des informations alors extraites est utilisée pour le diagnostic de fautes.

### 2.4 Etat de l'art du diagnostic pour les PEMFCs

Les recherches dédiées au diagnostic pour les PEMFCs connaissent un engouement depuis une dizaine d'années et des états de l'art très complets ont déjà été publiés. Yuan *et al.* référencent les différentes méthodes de diagnostic utilisant l'impédance-métrie [37]. Aitouche *et al.* présentent les travaux sur toutes les méthodes de diagnostic [44]. Zheng *et al.* [43] et Petrone *et al.* [40] publient deux articles complémentaires qui référencent respectivement les méthodes de diagnostic basées signal et les méthodes de diagnostic basées modèle.

Les travaux cités précédemment [44] [43] [40] classifient et présentent les méthodes de diagnostic en catégories : basées modèles, basées signaux, et en sous catégories selon la méthode utilisée. Dans cette section il est proposé de présenter un état de l'art des méthodes de diagnostic, classées selon le type de faute. Les fautes sont classées en deux catégories : les fautes de PàC et les fautes des auxiliaires.

Les fautes de PàC sont les fautes internes au stack et à la cellule : l'engorgement, l'assèchement, l'empoisonnement et le crossover. Les fautes des auxiliaires sont les défauts de fonctionnement ou les pannes des actionneurs, des capteurs et d'autres composants (ballons d'humidification) présents dans le système PàC. Ces fautes comprennent aussi les fuites de gaz et un mauvais fonctionnement des différents organes de contrôle.

Cette synthèse bibliographique ne se veut pas exhaustive et a pour but de mettre en exergue la diversité des fautes diagnostiquées, des outils et des méthodes utilisées.

### 2.4.1 Diagnostic de fautes PàC

De nombreux d'outils et de méthodes est utilisée depuis plus de dix ans pour diagnostiquer des fautes relatives à la gestion de l'eau ou à un empoisonnement au monoxyde de carbone (CO). Il est intéressant de classer les travaux selon l'outil utilisé : par mesures directes (perte de charge, tension, courant, résistance) ou suivant des méthodes plus élaborées (EIS, cartographie des paramètres locaux, impulsions en courant, changements de la valeur de la charge).

### Mesures directes

En 2004 Hissel *et al.* [45] proposent grâce à une supervision du point de fonctionnement (*mesure courant/tension*), un diagnostic basé modèle discriminant un état engorgé d'un état asséché. Un modèle flou de type Sugeno amélioré grâce à un algorithme génétique génère un résidu prenant comme référence le point de fonctionnement nominal de la PàC étudiée. La valeur du résidu permet d'isoler la faute : PàC engorgée ou membrane asséchée.

En 2005, Barbir *et al.* [32] utilisent d'autres indicatifs de l'état hydrique : *la mesure de la perte de charge et de la résistance de la membrane*. La méthode se limite à de la supervision de ces grandeurs. La variation de la valeur de la perte de charge et/ou de la résistance de la membrane indique la présence d'une faute. L'isolation résulte de l'observation de l'augmentation de la valeur de la perte de charge et de la résistance.

En 2006, Gorgun *et al.* [21] développent un observateur d'état pour déterminer la valeur de la teneur en eau de la membrane à partir de *la mesure de tension*. L'hypothèse proposée est qu'une chute de tension est due à une augmentation de la surtension ohmique et donc à une diminution de la valeur de la teneur en eau de la membrane (Equations 1.4 à 1.9 présenté dans la Sous-Section 1.4.1). La valeur de la teneur en eau est déterminée et un assèchement peut être diagnostiqué. Cependant, les auteurs attirent l'attention sur le fait qu'une chute de tension peut aussi être due à un engorgement, et sera interprétée comme un assèchement par cette méthode de diagnostic. Il est alors nécessaire d'associer un autre outil pour éviter les erreurs de diagnostic.

En 2009, O'Rourke *et al.* [46] détectent un engorgement dans un stack grâce au calcul de la valeur médiane des tensions de toutes les cellules. *La mesure de la tension de chaque cellule* du stack est nécessaire et la méthode permet de déterminer quelle cellule est engorgée. Lorsque le résidu représentant la distance entre la valeur de la tension d'une cellule et la valeur médiane de l'ensemble des tensions dépasse un seuil de tolérance, l'engorgement de la cellule est détecté et isolé. La méthode est efficace, cependant un engorgement peut être confondue avec un empoisonnement au CO qui présente la même signature sur le comportement des tensions.

En 2010, Yousfi et al. [47] développent une méthode de diagnostic basée modèle pour la détection d'un engorgement. La perte de charge est mesurée et modélisée grâce à un RN de Elman. La redondance analytique obtenue permet la génération d'un résidu, qui comparé à un seuil indique la présence d'une faute. Le seuil est défini à partir d'une méthode essais-erreurs. En 2011, Yousfi et al. [48] complètent leurs travaux en ajoutant une redondance analytique sur la tension du stack. Le dépassement du seuil de tolérance pour la tension permet de détecter la présence d'une faute. Le dépassement ou non du seuil de tolérance de la perte de charge permet d'isoler la faute : une augmentation de la perte de charge est caractéristique d'un engorgement, dans le cas contraire on est en présence d'un assèchement.

La même année, Yousfi *et al.* [49] proposent une méthode de diagnostic basée signal exploitant *la mesure de la tension*. Les caractéristiques du signal sont extraites par une décomposition multi-échelles utilisant la transformée discrète en ondelettes. Les auteurs observent que l'engorgement influence l'énergie contenue dans certains paquets d'ondelettes.

En 2013, Giurgea *et al.* [50] exploitent l'idée que la présence d'eau dans les canaux de distribution influence la valeur de la perte de charge. Les auteurs développent un modèle fluidique analytique dans le but de diagnostiquer l'engorgement des canaux de distribution. Le nombre de canaux inondés est calculé à partir de la *mesure de la tension* et de la *perte de charge*. Un degré d'engorgement est exprimé pour calculer la probabilité d'engorgement total de la pile.

En 2015, Damour *et al.* [51] proposent une méthode de diagnostic pour distinguer les états suivants : normal, engorgé et asséché. La méthode est basée sur la décomposition en modes empiriques (*EMD*, *Empirical Mode Decomposition*) de la tension aux bornes d'une PEM. L'EMD consiste en une décomposition d'un signal sur une base de fonctions. Contrairement en décompositions en ondelettes ou en séries de Fourier, la base de fonctions utilisée pour l'EMD est construite à partir des propriétés du signal, ce qui fait de l'EMD une méthode auto-adaptative. Une relation entre les contributions énergétiques des différentes composantes et l'état hydrique de la PàC est mise en évidence. La décomposition est effectuée sur une fenêtre glissante de 60 s, les tests sont effectués sur une monocellule de 50  $cm^2$  dont la tension est échantillonnée à 1 kHz. L'avantage de cette méthode est que seule la mesure de la tension est nécessaire. L'inconvénient est la nécessité d'une fréquence d'échantillonnage élevée : les effets de l'engorgement sont plus visibles pour les basses fréquences alors que l'assèchement influence les composantes haute fréquence : il est nécessaire d'imposer une fréquence d'échantillonnage de la tension est échantillonnage de 1 kHz pour permettre un diagnostic des deux états.

### Spectroscopie d'impédance

En 2006, Fouquet *et al.* [31] utilisent le constat que l'état hydrique d'une PàC est traduit par la forme des courbes d'impédance pour développer une méthode de diagnostic des fautes de gestion de l'eau. Les auteurs proposent un modèle équivalent électrique de Randle basé sur des équations physiques et des paramètres empiriques. Pour chaque état (engorgé, normal, asséché), des mesures d'impédance sont effectuées et trois paramètres empiriques du modèle sont identifiés et placés dans un repère 3D. Les résultats montrent que les points définis par ces triplets forment trois sous-espaces distincts correspondant aux états hydriques. L'identification de ces trois paramètres permettent de diagnostiquer si il y a présence d'une faute de gestion de l'eau.

En 2006, Mérida et *al.* [52] partent du même constat mais font l'observation que l'engorgement et l'assèchement n'influencent pas la courbe d'impédance sur les mêmes gammes de fréquences. Les auteurs n'utilisent pas de modèle mais calculent un ratio entre une mesure d'impédance de référence (obtenue pendant un fonctionnement sain) et une mesure d'impédance pour des états engorgés et asséchés. Il apparait que le ratio dépasse un seuil pour une gamme de 0.5 à 100 kHz en cas d'assèchement, et pour une gamme de 0.5 à 100 Hz en cas d'engorgement. Un ratio différent de zéro détecte une faute et la gamme de fréquence pour laquelle le ratio est non nul permet d'isoler la faute.

En 2013, Chevalier *et al.* [53] mettent au point un modèle d'impédance 2D basé sur des équations différentielles partielles physiques. L'identification du modèle se fait à partir

des mesures d'impédance-métrie. Les données expérimentales sont utilisées pour estimer les paramètres du modèle qui sont les paramètres électrochimiques de la cellule. L'analyse de ces paramètres électrochimiques permet de détecter un engorgement, mais aussi de le situer : à l'anode, à la cathode, à la GDL ou à l'électrode.

En 2014, Tant *et al.* [54] proposent un algorithme d'identification des paramètres d'un modèle d'impédance. Une étude des phénomènes électrochimiques montre des corrélations entre certains paramètres électrochimiques et permet d'enlever un degré de liberté dans l'identification des paramètres du modèle. Une analyse de la valeur des paramètres identifiés permet de détecter d'un engorgement, et de préciser sur l'engorgement atteint la GDL ou la couche active.

En 2014, Zheng *et al.* [55] développent un diagnostic automatique de 6 degrés d'hydratation de la PàC, de fortement asséché à fortement engorgé : engorgement (ou asséchement) sévère, engorgement (ou asséchement) modéré, engorgement (ou asséchement) léger. La méthode basée signal utilise les données extraites de mesures d'EIS (fréquence au maximum de phase, magnitude maximale, résistance de polarisation). Une méthode de classification floue (non supervisée) est utilisée pour définir les classes de données, puis une méthode de logique floue est utilisée pour le module de décision. Cette méthode utilisant la reconnaissance de formes ne permet de de situer la faute dans le stack.

### Impulsion en courant

En 2006, Sugiura *et al.* [56] utilisent un modèle équivalent électrique pour le diagnostic de l'engorgement. La mesure de la réponse temporelle à une impulsion en courant est utilisée pour identifier 7 paramètres empiriques du modèle d'impédance. Le diagnostic de l'engorgement est posé à partir d'observations préliminaires de sensibilité des différents paramètres à la faute.

En 2009, Kadyk *et al.* [57] exploitent un autre outil, le NFRA (Non Linear Frequency Response Analysis) dans le but de diagnostiquer trois fautes : l'engorgement, l'assèchement et l'empoisonnement au CO. Une perturbation sinusoïdale de forte amplitude est appliquée sur le courant de la pile et la tension résultante est analysée. La partie linéaire de la réponse correspond à la réponse à un EIS classique. Le comportement non linéaire permet d'isoler les fautes.

En 2012, Miege *et al.* [58] utilisent la mesure de la réponse temporelle en tension d'un stack à une *impulsion de courant* de fréquence variable. Pour chaque fréquence, le rapport de la transformée de Fourrier de la tension et du courant donne un nombre complexe placé sur un plan de Nyquist. Le nuage de point ainsi créé est approximé en une droite sécante à l'axe des réels. Il est montré que l'angle  $\alpha$  formé entre cette droite et l'axe des réels dépend de l'état d'humidification de la membrane. Les auteurs associent la valeur de  $\alpha$  à celle de la résistance de la membrane pour déterminer un indicateur de l'état d'humidification de la membrane : le HSI (*Humidity State Indicator*).

### Changements de courant de charge

En 2010, Rubio *et al.* [59] développent un outil de diagnostic facilement transportable et à faible coût, ne nécessitant pas l'utilisation de modules de mesure d'impédance. Deux modèles électriques sont proposés, l'un modélisant les fonctionnements en modes normal, engorgé et asséché. Le second décrivant le comportement dynamique de la PàC lorsque le catalyseur anodique est empoisonné par du CO. Les paramètres empiriques des deux modèles sont estimés grâce au relevé de la réponse dynamique du système à de faibles changements de courant de charge. Les relations entre ces paramètres empiriques et les paramètres électrochimiques de la PàC sont établies et permettent de déterminer la présence d'une faute. Trois fautes sont diagnostiquées : l'engorgement de la cathode, l'assèchement de la membrane et l'empoisonnement du catalyseur anodique.

### Cartographie des paramètres locaux

En 2015, Mohammadi *et al.* [60] caractérisent quatre degrés dans l'état hydrique d'une cellule. Les auteurs proposent un modèle 3D d'une monocellule, découpée en 9 segments. Chaque segment est décrit par un modèle équivalent électrique basé sur des équations physiques. Le modèle permet la détermination des paramètres locaux des 9 sous-cellules : une carte des densités de courant, des tensions et des températures est établie. Les sept premiers harmoniques fournies par les transformées de Fourier Rapides (*FFT, Fast Fourier Transform*) des tensions des sous-cellules sont collectées. Un RN est utilisé comme classifieur, avec en entrée les harmoniques et en sortie la faute et la localisation de la faute.

L'ensemble des travaux cités précédemment sont regroupés dans le tableau récapitulatif suivant (Tableau 2.1).

### 2.4.2 Diagnostic de fautes des auxiliaires

Dans cette sous-section, les méthodes de diagnostic de fautes liées aux auxiliaires sont présentées. Les références choisies illustrent la diversité des méthodes déjà développées dans la littérature. Il est à noter que pour chacune d'entre elles, les outils de diagnostics utilisés reposent sur l'acquisition des mesures accessibles par les capteurs présents sur le système PàC, dont les capteurs de pressions, de débits, de températures, de tensions (tension de PàC, tensions aux bornes du compresseur) et de courant. Les différents travaux se différenciant davantage par les méthodes utilisées que par les outils utilisés, il est plus intéressant de les présenter selon les méthodes que selon les outils.

Les références choisies illustrent la diversité des méthodes déjà développées dans la littérature.

### Diagnostic basé modèle

**Modèle empirique.** En 2010, Quan *et al.* [61] utilisent la redondance analytique dans le but de diagnostiquer les défauts de fonctionnement de cinq capteurs du système PàC. Chaque capteur est modélisé par un réseau de neurones (RN) dont la sortie devient une des entrées d'un RN principal. Lorsque les erreurs du RN principal et d'un des sous-réseaux atteignent un seuil de tolérance, la faute est détectée et isolée. Il est alors proposé d'utiliser la valeur donnée par le sous-réseau relatif au capteur défectueux au lieu de la sortie réelle de ce capteur.

En 2014, Kamal *et al.* [62] développent une méthode de diagnostic dans le but de détecter cinq fautes différentes : un problème dans la tension d'alimentation du compresseur, une fuite d'air dans le circuit d'alimentation, un défaut du capteur de puissance, trois fautes de capteurs. Les fautes sont détectés pour un écart de 10 % de la valeur nominale.

	[45]	[32]	[21]	[31]	[52]	[56]	[46]	[57]	$\left[47\right]$	[59]	[48]	[49]	[58]	[50]	[53]	[54]	$\begin{bmatrix} 55 \end{bmatrix}$	[60]	[51]
Faute :																			
Engorgement	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$								
Assèchement	$\checkmark$	$\checkmark$		$\checkmark$	$\checkmark$			$\checkmark$		$\checkmark$	$\checkmark$		$\checkmark$				$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$
Empoisonnemen CO								$\checkmark$		$\checkmark$									
Outils :																			
Mesure tension	$\checkmark$		$\checkmark$				$\checkmark$				$\checkmark$	$\checkmark$		$\checkmark$					$\checkmark$
Mesure perte de charge		$\checkmark$							$\checkmark$		$\checkmark$			$\checkmark$					
Mesure résis- tance		$\checkmark$																	
Impulsion en courant						$\checkmark$							$\checkmark$						
Changement du courant de charge										√									
EIS				$\checkmark$	$\checkmark$										$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$		
Cartographie des paramètres locaux																		$\checkmark$	
Méthodes :																			
Basée modèle	$\checkmark$			$\checkmark$		$\checkmark$			$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$			$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$		$\checkmark$	
Basée signaux		$\checkmark$	$\checkmark$		$\checkmark$		$\checkmark$	$\checkmark$				$\checkmark$	$\checkmark$				$\checkmark$		$\checkmark$

[45] [32] [21] [31] [52] [56] [46] [57] [47] [59] [48] [49] [58] [50] [53] [54] [55] [60] [

TABLE 2.1 – Tableau récapitulatif des travaux traitant du diagnostic appliqué aux fautes PàC

La méthode est basée sur la redondance analytique de différentes mesures disponibles sur le système PàC. Les modèles utilisés sont des réseaux à Fonctions de Bases Radiales (RBF, Radial Basis Function). Les résidus entre la prédiction et la mesure pour chaque réseau sont utilisés pour calculer un résidu final, soit la racine de la somme des carrés des résidus. Pour chaque faute, les résidus forment un motif différent. La classification des motifs permet une détection et une isolation de la faute.

Modèle analytique. En 2010, Yang *et al.* [63] développent une méthode de diagnostic de deux défauts dans l'alimentation en air : un défaut du capteur de pression et une surtension au niveau du compresseur. La méthode de l'espace de parité non linéaire qui appartient aux méthodes de redondance analytique permet de générer des résidus, qui sont comparés à des seuils de tolérance.

En 2011, Lira *et al.* [64] proposent un modèle à base d'observateurs basés sur une approche de type LPV (Linear Parameter Varying), pour une détection de cinq fautes : trois fuites différentes, un problème mécanique dans le compresseur et une diminution des performances électrochimiques. Les grandeurs modélisées et mesurées sont la pression d'alimentation, la tension du stack, la surstœchiométrie en oxygène et la vitesse angulaire du compresseur. Les résidus sont comparés à un seuil de tolérance adaptatif pour un diagnostic de la faute. En 2014, Rosish *et al.* [65] utilisent aussi la redondance analytique. Des résidus sont générés à partir des relations de consistance construites sur la base d'équations de modèle physique. Les fautes détectées sont : la surchauffe du compresseur, un mauvais contrôle du compresseur, une fuite d'air dans le circuit d'alimentation, un mauvais fonctionnement du circuit de refroidissement, une mauvaise humidification, une obstruction de la sortie cathodique et une fuite ou une obstruction des valves de sortie.

### Diagnostic basé signal

**Intelligence Artificielle.** En 2014, Shao *et al.* [66] proposent une méthode pour diagnostiquer les fautes suivantes : faute dans la régulation de la température de la cellule, crossover, faute dans l'alimentation en air et en hydrogène. Les modèles utilisés, contrairement à Kamal et al sont des RN avec rétropropagation. La sortie d'erreur des différents RN ainsi que leur matrice de poids sont combinées suivant la méthode du multiplicateur de Lagrange. Cette combinaison permet le calcule de la probabilité du diagnostic de la faute.

**Méthodes statistiques.** En 2015, Li *et al.* [67] développent une méthode basée signal. Les *tensions de chaque cellule* sont soumises à une analyse discriminante de Fisher FDA associée à l'utilisation de Machines à Vecteur Support (*SVM, Support Vector Machine*). Les fautes diagnostiquées sont : un trop fort courant ou un court-circuit, un arrêt du circuit de refroidissement, une surstœchiométrie en air trop haute ou trop basse et un empoisonnement au CO. La méthode a été testée sur différents stacks.

**Traitement des signaux.** En 2014, Benouioua *et al.* [68] détectent les fautes d'alimentation en air et en hydrogène, ainsi qu'un défaut dans la pression d'entrée de gaz à partir d'une méthode de diagnostic basée signal. Les caractéristiques du signal de tension sont extraites par une analyse multi-fractale basée sur le WTMM (Wavelet Transform Modulus Maxima) à savoir les modules maxima de la transformée en ondelettes.

Le tableau ci-dessous (Tableau 2.2) récapitule les références citées. Notons que deux références proposent aussi un diagnostic de deux fautes PàC en plus de celui des fautes des auxiliaires : ces fautes sont le crossover et l'empoisonnement au CO.

### Discussion

On peut remarquer que les méthodes de diagnostic des fautes des auxiliaires sont Les méthodes de diagnostic développées dans la littérature deviennent de plus en plus complexes et élaborées et tendent vers un même objectif : le diagnostic économique et rapide pour une utilisation sur des installations commerciales. Les algorithmes développés sont de préférence à faible temps de calcul.

### Conclusion

La grande diversité des outils et méthodes dédiées au diagnostic des PàC de type PEM témoigne de l'intérêt que porte la communauté des PàC à cette discipline. La gamme des fautes détectées s'étend des fautes PàC jusqu'aux fautes des auxiliaires et les méthodes

	<b>[61]</b>	[62]	[63]	<b>[64]</b>	[65]	[66]	[67]	[68]
Faute alimentation en air :								
Défaut capteur de pression	$\checkmark$		$\checkmark$					
Surtension compresseur		$\checkmark$	$\checkmark$					
Surchauffe du compresseur					$\checkmark$			
Problème mécanique compresseur				$\checkmark$				
Mauvais contrôle de l'alimentation					$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$
Fuite alimentation en air		$\checkmark$		$\checkmark$	$\checkmark$			
Fuite ou obstruction en sortie de cathode					$\checkmark$			
Capteur de surstœchiométrie en oxygène		$\checkmark$						
Faute alimentation en hydrogène :	-							
Défaut capteur de pression	$\checkmark$							
Mauvais contrôle de l'alimentation						$\checkmark$		$\checkmark$
Fuite alimentation en hydrogène				$\checkmark$				
Mauvaise humidification des gaz					$\checkmark$			
Mauvais fonctionnement du circuit de refroidis-					1	1	1	
sement					v	v	v	
Court-circuit ou forts courants							$\checkmark$	
Défaut capteur température PàC	$\checkmark$							
Défaut capteur tension PàC	$\checkmark$	$\checkmark$						
Défaut capteur courant PàC	$\checkmark$							
Défaut de capteur de puissance net		$\checkmark$						
Crossover						$\checkmark$		
Empoisonnement au CO							$\checkmark$	
Méthodes :	-							
Basées modèle								
Modèle analytique			$\checkmark$	$\checkmark$	$\checkmark$			
Modèle empirique	$\checkmark$	$\checkmark$						
Basées signaux								
Intelligence Artificielle						$\checkmark$		
Méthodes statistiques							$\checkmark$	
Traitement des signaux								$\checkmark$

TABLE 2.2 – Tableau récapitulatif des travaux traitant du diagnostic appliqué aux fautes des auxiliaires

ne cessent d'évoluer. Si l'importance du diagnostic est reconnu, pour la sûreté de fonctionnement et la stabilité du système, les industriels gardent des exigences de coûts et de faisabilité pour l'intégration de ces méthodes de diagnostic dans les systèmes réels. Ces exigences obligent les recherches à s'orienter vers des méthodes de diagnostic *rapides*, *peu coûteux* et qui ne diminuent pas les performances du système.

Une fois le diagnostic des fautes établi, une gestion des fautes est nécessaire, afin que le système puisse continuer de fonctionner. Aussi il est essentiel de développer des stratégies de contrôle *Tolérantes aux Fautes*.

## Chapitre 3

# Vers le Contrôle Tolérant aux Fautes (FTCS)

### Sommaire

<b>3.1</b>	Con	nmandes appliquées aux systèmes PàC de type PEMFC
3.2	Influ	ience des fautes sur le contrôle du système
3.3	Ges	tion de la faute
	3.3.1	Cas n°1 : Recouvrement de la faute
	3.3.2	Cas n°2 : Compensation
	3.3.3	Cas n°3 : Arrêt de l'installation.
<b>3.4</b>	Le (	Contrôle Tolérant aux Fautes
	3.4.1	Introduction au Contrôle Tolérant aux Fautes
	3.4.2	Les classes de Contrôles Tolérants aux Fautes
	3.4.3	Le FTCS appliqué aux PEMFCs

### Introduction

CHAQUE AUXILIAIRE D'UN SYSTÈME PÀC doit être contrôlé afin de garantir des conditions opératoires optimales. La grande variété des éléments à contrôler exigent la présence d'un ensemble de contrôleurs qui assurent le bon fonctionnement du système entier.

Dans le Chapitre précédent, l'accent a été mis sur la pertinence de la détection de fautes pour préserver les performances et allonger la durée de vie du système PàC. Il est proposé ici d'exposer la méthodologie pour prendre en compte ces défauts dans le contrôle du système.

Pour la gestion des fautes et pour assurer une qualité de service du système, il est nécessaire d'automatiser la détection et la gestion des fautes en intégrant un module de diagnostic dans le correcteur. Ce type de stratégies, connu sous le nom de *Contrôle Tolérant aux Fautes*, permet de détecter les fautes, et de modifier a loi de commande pour minimiser leur impact sur le fonctionnement de la pile (Cf thèse de Benoît Marx [69]).

Ce Chapitre est construit comme suit : dans les trois premières sections, les stratégies de commande classiques dédiées aux PEMFCs présentes dans la littérature seront décrites, ainsi que l'influence des fautes sur celles-ci et les scénarios de gestion de fautes. Une quatrième section est dédiée au concept de Contrôle Tolérant aux Fautes dans laquelle un état de l'art sur le contrôle tolérant aux fautes appliqué aux systèmes à base de PEMFC est dressé.

### 3.1 Commandes appliquées aux systèmes PàC de type PEMFC

Comme il a été vu au Chapitre 1 (Section 1.5), un système PàC est composé d'auxiliaires dont la fonction est de maintenir les conditions opératoires optimales pendant l'utilisation d'un stack ou d'une cellule de PàC. Ces auxiliaires sont pilotés simultanément par un système de supervision et de contrôle, composé de différents organes, dont les plus importants sont :

- le contrôle de la puissance du stack,
- le contrôle de la surstœchiométrie en oxygène,
- le contrôle de l'alimentation en hydrogène,
- la régulation de la température de cellule,
- et la gestion de l'eau dans le stack.

Les stratégies de contrôle des systèmes PàC de type PEMFC sont largement présentes dans la littérature. Les thèses de Pukrushpan [70] et de Feroldi [71] présentent un état de l'art complet du contrôle de systèmes PàC et de systèmes hybrides à base de PàC.

Les stratégies synthétisés par les auteurs couvrent la majorité des régulateurs connus : le régulateur PID, la commande prédictive, la commande adaptative, la commande par modes glissants, la commande par platitude et la commande par passivité. Les régulateurs PID sont les plus utilisés dans l'industrie pour leur simplicité et leur efficacité pour des systèmes simples. Cependant, la complexité d'un système PàC oblige les auteurs à développer des régulateurs PID plus évolués, notamment pour prendre en compte les non linéarités des systèmes.

En 2010, Wang *et al.* [72] proposent un régulateur PID multivariables pour contrôler la tension et le courant du stack en manipulant la tension appliquée à la pompe à air et la tension appliquée à la valve d'entrée de l'hydrogène.

En 2014, Damour et al. [73] développent un PID auto-adaptatif afin de contrôler la surstœchiométrie en oxygène par la régulation du débit d'air. La stratégie proposée permet d'éviter l'épuisement d'oxygène durant les changements de courant de charge. Les paramètres du PID sont réévalués à chaque période d'échantillonnage grâce à un processus non itératif. La stratégie est testée sur un système réel comprenant une monocellule de  $50 \ cm^2$ .

La commande prédictive à base de modèle non linéaire (*NMPC*, *Nonlinear Model Predictive Control*) est une stratégie fréquente pour la commande des systèmes complexes. L'implantation dans la boucle de commande d'un modèle prédicteur permet de prévoir le comportement du système sur un horizon de prédiction, et d'ajuster la variable de commande pour minimiser l'écart entre la réponse du système et une trajectoire de référence définie à partie de la consigne.

En 2007, la commande prédictive est utilisée par Feroldi *et al.* [74] pour contrôler la tension de sortie du stack ainsi que la surtœchiométrie en oxygène. Les variables manipulées sont la tension du compresseur ainsi que le débit de sortie à la cathode. La commande est testée et validée par simulation sur la plateforme MatLab®Simulink.

En 2008, toujours sur une cette même plateforme, Zhang *et al.* [75] développent une stratégie de contrôle à base de commande prédictive de la concentration en eau à la cathode par la régulation du débit d'eau injectée par l'humidificateur.

En 2013, Ziogou *et al.* [76] mettent en place une stratégie NMPC sur une monocellule de 25  $cm^2$  afin d'atteindre un objectif triple : garantir une puissance de sortie maximale, tout en évitant l'épuisement de l'oxygène et en minimisant la consommation d'hydrogène. Les variables manipulées sont le courant, le débit d'air et le débit d'hydrogène pour un contrôle de la puissance de sortie, et de la surstœchiométrie en oxygène et en hydrogène.

En 2013, Zhao *et al.* [77] développent une commande prédictive paramétrique (pMPC, parametric Model Predictive Control), pour le contrôle de la tension de sortie et de la température du stack. Les variables manipulées sont les surstœchiométries en oxygène et en hydrogène, et le débit d'eau du circuit de refroidissement. Les performances de cette commande prédictive sont comparées aux performances d'un PID classique par simulation.

En 2014, Damour *et al.* [78] proposent une pMPC dans l'objectif de contrôler la tension d'une monocellule de 50  $cm^2$ . Les variables manipulées sont le courant, le débit d'air et le débit d'hydrogène. La commande est testée et validée sur un système réel.
La commande adaptative est utilisée pour les systèmes dont les paramètres sont changeants ou au préalable incertains. Les commandes par Recherche d'Extremum (*ESC*, *Extremum Seeking Controller*) font partie des commandes adaptatives.

En 2010, Becherif *et al.* [79] proposent un contrôleur basé sur la Recherche du Point de Puissance Maximale (*MPPT*, *Maximum Power Point Tracking*), pour assurer une puissance produite maximale en calculant la valeur de surstœchiométrie optimale. Le schéma de commande est validé en simulation.

En 2014, la stratégie développée par Bizon *et al.* [80] permet de calculer le débit d'air optimal pour obtenir une puissance nette produite maximale. La méthode est basée sur la Recherche du Point de Rendement Maximal (*MEP*, *Maximum Efficiency Point*) par l'observation du comportement de la variable contrôlée lors d'une perturbation de la variable manipulée (méthode du  $P \mathcal{C}$  O, Perturb and Obserb method). Le système PàC et le contrôleur sont implémentés sur la plateforme MatLab®Simulink.

La commande par modes glissants. En 2013, Matraji *et al.* [81] assurent une puissance nette optimale grâce à un contrôleur par modes glissants non linéaire du second ordre. En manipulant la vitesse de rotation du compresseur, le contrôleur garantit une surstœchiométrie en oxygène optimale. La stratégie est mise en place sur un émulateur HIL (*Hardware In Loop*).

La commande par platitude différentielle. En 2008, Danzer *et al.* [82] proposent la régulation de la surstœchiométrie en oxygène et de la pression de l'air à la cathode au moyen d'une commande par platitude différentielle utilisant le débit d'air et la tension appliquée à la valve de sortie de la cathode.

En 2014, da Fonseca et *al.* [83] proposent la régulation de la surstœchiométrie en oxygène et de la pression de l'air à la cathode au moyen d'une commande par platitude différentielle. Les variables manipulées sont la vitesse du compresseur et la tension d'entrée de la valve d'alimentation à la cathode. La commande est implémentée et testée grâce à un modèle dynamique de système PàC.

En 2015, Damour et *al.* [84] utilisent aussi la commande par platitude différentielle, mais cette fois pour le contrôle de la teneur en eau de la membrane pour éviter les problèmes de gestion de l'eau (engorgement ou assèchement) et les dégradations associées. Le débit d'air à la cathode est la variable manipulée. La commande est implémentée et testée grâce au modèle d'un stack de 10 kW.

La commande par passivité appliquée à un système hybride composé de PàCs et de supercondensateurs est développée par Hilairet *et al.* [85]. Les auteurs proposent un contrôle de la tension du bus DC connecté aux stacks, et de la tension aux bornes des supercondensateurs tout en évitant la sous alimentation en gaz réactifs pendant les changements rapides de courant de charge. La commande par passivité est une méthodologie de conception de contrôleur dont le but est de rendre passif<sup>1</sup> le système en boucle fermée.

<sup>1.</sup> D'un point de vue énergétique, un système passif est un système qui ne peut pas stocker l'énergie qui lui est fournie par une source. La passivité d'un système est fortement reliée à sa stabilité.

#### Discussion

Les stratégies de commande présentées sont souvent testées en simulation, et rarement sur des systèmes PàC réels. Il est cependant important de valider ces méthodes sur des systèmes réels pour vérifier qu'elles répondent à la contrainte majeure du temps-réel, à savoir : un temps de calcul de l'algorithme de commande suffisamment faible.

## 3.2 Influence des fautes sur le contrôle du système

Les performances de ces stratégies de contrôle, et donc le fonctionnement optimal du système PàC peuvent être perturbées par l'apparition de fautes, qu'il s'agisse des fautes au niveau des capteurs, des actionneurs ou de la PàC.



FIGURE 3.1 – Influence des fautes sur le contrôleur

Les fautes capteurs. Un capteur peut être défectueux, mal calibré ou en panne ce qui peut avoir une influence sur la commande. Un capteur défectueux produit une information erronée qui donne une image fausse de l'état du système au contrôleur, ce qui altère les performances de ce dernier.

Les fautes actionneurs peuvent résulter d'une panne de l'actionneur ou d'un mauvais fonctionnement de celui-ci. Le contrôleur envoie la valeur de la variable manipulée à l'actionneur défectueux qui n'applique pas correctement cette valeur. S'en suivent de mauvaises conditions opératoires ne permettant plus de maintenir le fonctionnement optimal.

Les fautes PàC. Lorsqu'une stratégie de contrôle comprend un modèle, la précision de ce modèle est essentielle pour assurer des performances optimales. Le modèle interne au

contrôleur est identifié à partir d'un fonctionnement nominal, et n'est pas toujours réactualisé pour prendre en compte les changements de caractéristiques du système. Lorsque le système fonctionne en mode dégradé, comme l'engorgement, l'assèchement et l'empoisonnement au CO, le modèle identifié ne reflète plus son comportement réel. Les performances de la stratégie de contrôle sont alors diminuées.

La Figure 3.1 illustre les différentes fautes et leur influence sur la chaîne de commande.

# 3.3 Gestion de la faute

Pour éviter que l'apparition d'une faute ne perturbe le fonctionnement du système, il faut envisager une adaptation de la stratégie de contrôle pour une gestion adéquate de la faute.

L'apparition d'une faute peut être gérée de trois façons et l'action à entreprendre dépend du type de faute détectée :

- 1. le recouvrement de la faute,
- 2. la compensation de la faute,
- 3. et l'arrêt machine.

Ces trois scénarios sont détaillés dans les paragraphes suivants.

#### 3.3.1 Cas n°1 : Recouvrement de la faute

Certaines fautes peuvent être recouvrées grâce à un contrôle adapté des conditions opératoires, dans le but de minimiser les dégradations qui en résultent. Les performances du système global ne sont pas altérées, on évite l'arrêt machine et on augmente la durée de vie du système.

**Exemple :** Lors d'une faute de gestion de l'eau (engorgement et assèchement), le recouvrement de la faute peut se faire par l'ajustement des paramètres opératoires qui influencent l'état hydrique de la PàC. Le contrôle de la surstœchiométrie en air, de la température de PàC ou du taux d'humidification des gaz permet de rétablir un taux d'humidité optimal.

#### 3.3.2 Cas n°2 : Compensation

Dans certains cas, les fautes ne peuvent être recouvrées par une stratégie de contrôle : une intervention de maintenance est nécessaire. Cependant, lorsque la présence de ces fautes n'est pas dangereuse, il est possible d'assurer un fonctionnement optimal ou suboptimal en ajustant la stratégie de contrôle. Il s'agit de compenser la faute utilisant une nouvelle chaîne d'actionneurs ou de capteurs, ou d'utiliser les redondances possibles. **Exemple :** Ces fautes sont par exemple les défaillances des capteurs, ou un mauvais calibrage des actionneurs. Dans le premier exemple, la solution peut résider dans l'utilisation par le contrôleur de la réponse estimée d'un modèle du capteur (lorsque celui-ci est déjà implémenté dans la méthode de diagnostic [61]) par le contrôleur, au lieu de la réponse du capteur défectueux. Dans le second exemple, le contrôleur doit tenir compte de l'offset dû au mauvais calibrage de l'actionneur, et adapter la valeur de la variable manipulée. Ces ajustements assurent un fonctionnement optimal ou suboptimal jusqu'à la prochaine intervention de maintenance.

#### 3.3.3 Cas n°3 : Arrêt de l'installation.

Pour finir, certaines fautes induisent un danger potentiel, pour des raisons de sécurité ou parce qu'elles peuvent endommager irrémédiablement un ou des éléments de l'installation. Il est impératif d'arrêter immédiatement le système.

**Exemple :** Ces fautes peuvent être une fuite d'hydrogène, des problèmes électriques (court-circuit), des problèmes mécaniques dans le compresseur, ou encore une température de stack excessivement élevée qui peut détruire les membranes.

#### Discussion

Chaque cas décrit ci-dessus nécessite une adaptation de la stratégie de commande. Le cas n°3 nécessite l'automatisation d'une méthode de diagnostic couplée à un organe de prise de décision pour un arrêt immédiat et sûr de l'installation.

Les stratégies de contrôle conventionnelles présentées dans la section 3.1 ne sont pas appropriées dans les cas n°1 et 2, qui sont les cas les plus susceptibles d'apparaître durant le fonctionnement. Ces stratégies, malgré leur robustesse, doivent être adaptées pour assurer un fonctionnement optimal en cas de fautes. On dit qu'elles doivent être *tolérantes aux fautes* : elles doivent permettre une gestion automatique des fautes, en appliquant un recouvrement ou une compensation de celle-ci.

# 3.4 Le Contrôle Tolérant aux Fautes

Il a été vu à la section précédente que les fautes ont une influence néfaste sur les organes de contrôle et qu'elles entraînent une dégradation des performances des schémas de commande ainsi que des composants du système PàC. Afin de développer une stratégie de contrôle optimale du système PàC, dans cette section il est proposé de présenter le Contrôle Tolérant aux Fautes (*FTCS, Fault Tolerant Control System*).

#### 3.4.1 Introduction au Contrôle Tolérant aux Fautes

L'optimisation des performances des systèmes de production entraîne la mise en place de stratégies de contrôle de plus en plus complexes. L'enjeu est multiple : garantir un fonctionnement optimal de l'installation, assurer la sécurité de son utilisation, prévenir la dégradation ou le vieillissement prématuré des composants et tolérer l'apparition de fautes. Un fonctionnement défectueux des composants du système, comme les capteurs ou les actionneurs, perturbe celui des stratégies de contrôle classiques qui présentent des performances insuffisantes en présence de fautes. L'influence de la présence de fautes sur le contrôle est d'autant plus importante que le système est sensible.

Les recherches s'orientent vers des stratégies de contrôle assurant la fiabilité<sup>2</sup>, la durabilité<sup>3</sup> et la stabilité<sup>4</sup> des installations et des systèmes.

Un nouveau concept émerge depuis quelques années dans le domaine de l'industrie de l'énergie : le concept de résilience<sup>5</sup> [1]. La résilience est utilisée pour décrire la capacité d'un système à absorber les événements inattendus tout en continuant à délivrer les performances demandées pour l'utilisateur.

Des stratégies de contrôle plus élaborées visant à augmenter la résilience des systèmes sont développées comme le Contrôle Tolérant aux Fautes (FTCS, Fault Tolerant Control System) dont le but est d'assurer un fonctionnement optimal ou suboptimal malgré l'apparition de fautes dans le système. Il gère automatiquement la faute et répond aux exigences de performances et de sécurité. Un FTCS est un contrôleur en boucle fermée susceptible de tolérer un certain nombre de fonctionnements défectueux tout en garantissant les performances désirées et la stabilité du système [75].

Le FTCS est très développé pour les installations qui demandent une grande sûreté d'utilisation, comme les transports routiers et ferroviaires, l'aéronautique et l'aérospatial. De nombreux domaines d'application sont décrits par Zhang et al [75] :

- les avions,
- les hélicoptères,
- les navettes spatiales,
- les automobiles,
- les chaînes de montage automobile,
- la gestion des réseaux routiers,
- les bâteaux et sous-marins,
- les moteurs,
- les centrales nucléaires,
- les installations chimiques et pétrochimiques,
- et les robots.

<sup>2.</sup> Fiabilité : Capacité d'un système à remplir la fonction requise sous des conditions fixés pour un temps donné.

<sup>3.</sup> Durabilité : Capacité d'un système à supporter la diminution des performances.

<sup>4.</sup> Stabilité : Capacité à récupérer la puissance perdue durant les conditions opératoires continues. Pour les PàC, la perte de stabilité est due à une mauvaise gestion l'eau, et aux changements matériels réversibles.

<sup>5.</sup> Résilience : Capacité à absorber une perturbation, à se réorganiser, et à continuer de fonctionner de la même manière en dépit des perturbations.

Ce sont des systèmes à sécurité critique<sup>6</sup>, à coût critique<sup>7</sup> ou à volume critique<sup>8</sup>.

Les développements de FTCS pour ces applications *sensibles* du FTCS sont stimulés par la recherche militaire et aérospatiale (Europe, AirForce, NASA...).

#### 3.4.2 Les classes de Contrôles Tolérants aux Fautes

Les méthodes de contrôle tolérant aux fautes peuvent être classées en deux catégories : le **Contrôle Tolérant aux Fautes Passif** (*PFTCS, Passive Fault Tolerant Control System*), et le **Contrôle Tolérant aux Fautes Actif** (*AFTCS, Active Fault Tolerant Control System*). Le PFTCS tolère la faute sans que l'algorithme de contrôle ne subisse de reconfiguration, alors que le AFTCS s'adapte à sa présence.

Contrairement au PFTCS, le AFTCS comprend un module de diagnostic ou d'évaluation des performances, un module de reconfiguration (ou de décision), et une reconfiguration du contrôleur. Le résultat du diagnostic est transmis au module de reconfiguration qui décide de l'action à entreprendre en réponse à la faute détectée. Le contrôleur est alors reconfiguré pour permettre un fonctionnement optimal en dépit de l'apparition de la faute. Dans le cas où aucun module de diagnostic n'est utilisé, l'état du système est évalué à partir des données d'entrée et de sortie du système. La Figure 3.2 détaille la hiérarchie des types de FTCS [86].

Les deux classes de FTCS sont détaillées dans les paragraphes suivants.



FIGURE 3.2 – Classification des types de Contrôle Tolérant aux Fautes

<sup>6.</sup> Des systèmes sont dits à sécurité critique, lorsqu'une panne peut avoir des répercussions catastrophiques, comme l'atteinte à l'intégrité des usagers, des dégâts matériels importants ou des conséquences graves pour l'environnement. Une installation nucléaire est un système à sécurité critique.

<sup>7.</sup> Les systèmes à coût critique sont par exemple les satellites et les lanceurs spatiaux, systèmes pour lesquelles les dégradations ont des répercutions financières importantes.

<sup>8.</sup> Les systèmes à volume critique sont par exemple les réseaux routiers et les chaînes de montage.

#### Le Contrôle Tolérant aux Fautes Passif (PFTCS)

Le PFTCS tolère un ensemble de fautes prédéfinies. Ces fautes sont sélectionnées grâce à des connaissances a priori du système.

Les PFTCSs sont synthétisés à partir de schémas de commande classiques déjà existantes (comme la commande prédictive) dans le but d'exploiter leur robustesse. Le contrôleur compense les fautes anticipées. Les paramètres du contrôleur sont fixés en amont, pour être tolérant aux fautes prévues. Il est considéré comme Passif car aucune action n'est entreprise face à la faute. Les PFTCSs sont synthétisés de manière à être le plus insensible possible aux fautes [87] et leur action est ciblée sur la fiabilité, la durabilité et la stabilité du fonctionnement global plutôt que sur la performance.

Le PFTCS ne nécessite pas de module de diagnostic, car il traite les effets de la faute comme des incertitudes du modèle interne de la commande, d'où l'utilisation d'algorithmes de commande robuste.

Cependant, le nombre de fautes tolérées est défini lors de la conception. Augmenter excessivement le nombre de fautes tolérées peut conduire à une diminution des performances du contrôleur : il est important de faire un compromis entre les performances du contrôleur et le nombre de fautes tolérées.

#### Le Contrôle Tolérant aux Fautes Actif (AFTCS)

Plusieurs dénominations sont connues pour ces stratégies : contrôle auto-réparant, contrôle reconfigurable ou encore contrôle restructurable. Le AFTCS est une stratégie de contrôle qui s'adapte automatiquement à la faute de deux façons possibles : soit par l'adaptation du contrôleur existant, soit par la sélection d'un contrôleur adapté. Dans le premier cas on parle de reconfiguration du contrôleur, dans le second de sélection du contrôleur.

#### Reconfiguration du contrôleur

L'AFTCS comprenant la reconfiguration du contrôleur est en général composé d'un module de diagnostic en ligne, d'un module de reconfiguration temps réel (ou de prise de décision) et d'un contrôleur reconfigurable (Figure 3.3).

Contrairement au PFTCS, l'AFTCS s'adapte à chaque faute détectée. Le diagnostic de la faute est une information importante qui est transmise au module de décision dont le rôle est de mettre en place les actions à mener pour une compensation ou un recouvrement de la faute. Ce module peut décider de la reconfiguration du contrôleur avec de nouvelles contraintes, du changement de ses variables d'entrées ou du calcul d'une nouvelle trajectoire de référence.

#### Sélection du contrôleur

L'AFTCS par sélection du contrôleur nécessite la construction d'une banque de contrôleurs. Chaque contrôleur de la banque correspond à un mode de fonctionnement : nominal ou dégradé. La banque comprend un contrôleur pour chaque faute anticipée, en plus d'un contrôleur pour le fonctionnement nominal.



FIGURE 3.3 – Schéma global du Contrôle Tolérant aux Fautes Actif

Un algorithme permet de choisir le contrôleur le plus adapté à la situation, à partir d'une évaluation des performances et à l'observation des entrées/sorties du système. Les contrôleurs sont ordonnés selon un ordre de priorité, et le choix peut se faire à l'aide du Contrôle Inaltéré (UC, Unfalsified Control). La stratégie UC est un mécanisme d'apprentissage qui permet une exclusion efficace, simultanée et rapide des contrôleurs inadéquats à partir d'un jeu de contrôleurs prédéfini [88]. Le principe de fonctionnement est illustré par la Figure 3.4.

L'avantage principal de ce type de AFTCS est qu'il a une grande modularité. Dans le cas où le système doit être tolérant à une autre faute, il est possible d'ajouter un nouveau contrôleur à la banque.



FIGURE 3.4 – Fonctionnement d'un FTCS par sélection du contrôleur

#### 3.4.3 Le FTCS appliqué aux PEMFCs

Le FTCS est une discipline déjà très développée dans certains domaines comme la production de l'énergie, l'aéronautique et l'aérospatial. Cependant ces stratégies sont encore peu utilisées dans le domaine du contrôle des PàCs.

Les PàCs sont des générateurs électrochimiques déjà commercialisées mais leur utilisation reste encore restreinte. L'utilisation d'hydrogène soulève des questions de sécurité en cas de fuite, et la fragilité de la membrane pose la question de la durabilité et de la stabilité du système.

Pour une augmentation de la production des PàCs, il est indispensable de garantir une sûreté d'utilisation, des performances désirées et la stabilité du système. Le FTCS appliqué aux systèmes PàC peut apporter les éléments précédemment cités et permettre une généralisation de leur utilisation. Cependant seulement quelques travaux se rapportent à l'application du FTCS aux PàC de type PEMFC.

En 2008, Ari *et al.* [88] utilisent un FTCS basé sur une stratégie UC. La stratégie de contrôle tolérant aux fautes est élaborée pour compenser les fautes du système d'alimentation en air : changements du paramètres du circuit d'alimentation, fautes de réponses dynamiques et faute du capteur de débit d'air. Une banque de trois contrôleurs est construite. Le premier contrôleur correspond au fonctionnement nominal, le second correspond au fonctionnement avec fautes liées aux paramètres et aux réponses dynamiques. Le troisième contrôleur est dédié au fonctionnement avec faute du capteur de débit d'air entrant. Une estimation en ligne des performances permet de choisir un contrôleur dans la banque. Cette estimation ne comprend pas de modèle et est basée sur les données d'entrées/sorties du système. La stratégie est testée en simulation.

Puig *et al.* [89] exploitent les qualités inhérentes au contrôle prédictif pour l'utiliser dans le cas d'un AFTCS. Testé en simulation, cette stratégie de contrôle vise à éviter l'épuisement en air en contrôlant la surstœchiométrie en oxygène. La stratégie comporte une étape de diagnostic et un contrôleur reconfigurable sur la base d'une commande prédictive. La méthode de diagnostic (qui n'est pas exposée dans l'article) détecte une diminution de la plage de fonctionnement du compresseur. Cette nouvelle plage est transmise pour la reconfiguration du contrôleur : les nouvelles contraintes sont incluses dans la commande prédictive. Cet article explore aussi la possibilité d'utiliser deux actionneurs plutôt qu'un seul pour le contrôle de la surstœchiométrie en oxygène : contrôle de la tension du compresseur et contrôle de l'aire d'ouverture de la valve de sortie cathodique. Il est montré que l'utilisation de deux actionneurs permet un meilleur contrôle et une plus grande tolérance aux fautes.

En 2010, Quan *et al.* [61] développent un AFTCS, avec une reconfiguration des entrées du contrôleur. Cet article se focalise sur la méthode de diagnostic (présentée précédemment dans le Chapitre 2, au Paragraphe 2.4.2), mais il décrit l'adaptation du contrôleur en cas d'apparition de fautes. Les fautes capteurs sont diagnostiquées à l'aide d'une redondance analytique qui reproduit le fonctionnement sain de ces capteurs. Lorsqu'une faute est détectée au niveau de l'un des capteurs, l'information qu'il produit n'est plus envoyée au contrôleur : les entrées du contrôleur sont redéfinies pour être fournies par les modèles utilisés pour la redondance analytique, qui sont ici des modèles empiriques. Xu et al. [90] présentent une AFTCS pour un bus à groupe motopropulseur hybride PàC/batterie dont l'enjeu est de répartir judicieusement la demande en puissance à la PàC et à la batterie. Trois types de défauts sont détectés grâce à la redondance physique et analytique : faute à la pédale d'accélération, faute de gestion des températures de batterie et de PàC, et faute à l'estimation de l'état de charge de la batterie. Selon le diagnostic des défauts, un module de prise de décision sélectionne l'une des six actions prédéfinies à entreprendre pour récupérer les performances du système. Cette décision est utilisée pour reconfigurer l'algorithme de commande dédié à l'estimation de la demande moyenne de puissance. Les auteurs montrent que la stratégie proposée est efficace, cependant à cause de la présence de modèles empiriques utilisés dans le diagnostic des défauts, l'applicabilité de cette stratégie est limitée.

En 2015, Aouzellag *et al.* [91] proposent un AFTCS dédié au contrôle d'un véhicule hybride composé de PàC et de supercondensateurs. Le but est de stabiliser la puissance délivrée par la PàC, pour allonger sa durée de vie et celle du système entier. Le contrôle tolérant aux fautes consiste ici en un choix entre deux jeux de courant appliqué au moteur synchrone.

# Conclusion

Dans une optique de gestion des fautes, il a été important d'évaluer l'influence des fautes sur le contrôle du système. Tous les auxiliaires d'un système PàC sont contrôlés pour garantir son bon fonctionnement : les températures, les pressions, les débits des gaz, ainsi que la température du stack sont régulés par un jeu de contrôleurs dont le fonctionnement peut être altéré par l'apparition de fautes dans le système. Les organes de contrôle utilisés doivent être adaptés pour être tolérants aux fautes.

Dans ce Chapitre, une présentation du FTCS a été proposée. Les différents types de FTCS ont été présentés ainsi que les travaux de FTCS appliqués aux systèmes à base de PEMFC. Le contrôle tolérant aux fautes appliqué aux PEMFCs est en voie de développement et les recherches associées sont pour l'instant dédiées au contrôle de systèmes hybrides incluant des PàCs, comme les véhicules hybrides, mais très peu appliquées directement aux systèmes PàCs.

Les travaux cités pour le FTCS se concentrent sur la compensation de la faute, c'est à dire que la stratégie de contrôle sollicite une nouvelle chaîne d'actionneurs ou de capteurs et utilise la redondance pour palier à la faute. Ce sont des stratégies adaptées lors de fautes capteurs ou actionneurs. Cependant en présence de fautes de gestion de l'eau, il est nécessaire de mettre en place une stratégie de recouvrement pour éviter les dégradations des composants et des performances liées à ces fautes. Peu de travaux ont été publiés sur la gestion des fautes liées au taux d'humidification des PEMFC et aucun utilisant une stratégie de type FTCS comme stratégie de contrôle.

# Chapitre 4

# Dispositif expérimental

# Sommaire

4.1	Mor	<b>nocellule PEMFC de</b> 50 $cm^2$	
4.2	Desc	cription du banc d'essai FCT 86	
	4.2.1	Alimentation en gaz réactifs	
	4.2.2	Gestion de l'eau 87	
	4.2.3	Gestion de la chaleur	
	4.2.4	Gestion de la puissance produite	
	4.2.5	Supervision et contrôle	
4.3	Imp	lantation de la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes . 89	
4.4	Exp	érimentations	
	4.4.1	Conditions opératoires en fonctionnement "normal" 92	
	4.4.2	Simulation de la faute	

# Introduction

CETTE THÈSE se concentre sur la mise en place en ligne, d'une stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes pour un système PàC réel. Dans le but de tester et valider cette stratégie, elle a été appliquée à un système PàC réel. Ces tests ont été effectués sur le banc d'essai du  $LE^2P$ .

Ce Chapitre est consacré à la description du banc d'essai et de la PàC utilisée pendant les phases d'expérimentation. La première section est dédiée à la description de la Pile à Combustible choisie. La seconde et la troisième section décrivent la structure du banc d'essai et de son interface de contrôle. La dernière section expose l'intégration de la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes à l'interface de contrôle.

# 4.1 Monocellule PEMFC de $50 \ cm^2$

L'AME utilisée est produite par Paxitech et sa surface active est de 50  $cm^2$ . Elle est composée de 5 couches, comprenant une membrane en Nafion®avec, de chaque côté, une couche de catalyseurs et une couche de diffusion en tissu de carbone. Les caractéristiques de cette AME sont regroupées dans le Tableau 4.1.

AME avec couche de diffusion Freudenberg, en feutre non tissé de fibres de carbone			
Traitement hydrophobique		$\checkmark$	
Couche microporeuse		$\checkmark$	
Epaisseur	$[\mu m]$	250	
Masse surfacique	$[g/m^{2}]$	135	
Résistivité traversante	$[m\Omega cm^2]$	8	
Résistance	$[\Omega]$	1.7	
Résistance au déchirement	[N/50 mm]	70	
Epaisseur de la membrane	$[\mu m]$	125	
Chargement en catalyseur	$[mgPt/cm^2]$	0.5	
Densité de courant d'échange $H_2/Pt$ , à 1 bar, 353.15 K	$[A/m^{2}]$	100	
Densité de courant d'échange $O_2/Pt$ , à 5 bar, 353.15 K	$[A/m^2]$	$1.38.10^{-2}$ à $1.87.10^{-2}$	

TABLE 4.1 – Caractéristiques de l'AME produite par Paxitech

Les plaques bipolaires, les plaques collectrices, et les plaques de maintien ont été fournies par Fuel Cell Technologies (FCT) avec le banc d'essai. Les plaques bipolaires sont en graphite. Elles sont symétriques et sont gravées de canaux en quadruple serpentin comme le montre la Figure 4.1.



FIGURE 4.1 – Schéma constructeur des plaques bipolaires

Le montage de l'ensemble AME-plaques bipolaires-plaques collectrices-plaques de maintien (Figure 4.2) est réalisé au laboratoire. Le couple de serrage optimal des vis dans les plaques de maintien a été défini lors d'une étude préliminaire. La valeur retenue est de 12 N.m.



FIGURE 4.2 – Pile à Combustible

# 4.2 Description du banc d'essai FCT

Le banc d'essai a été conçu par Fuel Cell Technolgies, une entreprise de conception et de fabrication de bancs d'essai et d'équipements dédiés aux tests en Recherche et Développement des PàCs. Le banc d'essai du  $LE^2P$  (Figure 4.3) est conçu pour tester des PàCs de type PEMFC ou DMFC, en stack ou en monocellule.



FIGURE 4.3 – Photo du banc d'essai

Le schéma structurel du banc d'essai (Figure 4.4) extrait de [78] présente les principaux éléments présents à l'intérieur du banc.

Le banc d'essai comprend divers instruments de mesures et dispositifs de contrôle, entre autres :

- Deux contrôleurs de contre-pression de type Booster 20812BP (Figure 4.5d)
- Trois contrôleurs de température de type Love Controller 16 A (Figure 4.5a) et Love Controller 32 DZ,
- Deux contrôleurs de débit-masse de type MKS Instrument 1179A (Figure 4.5b),
- Une charge électronique modulaire de 1800W : N3300A,
- Un transducteur de contre-pression (Figure 4.5c),
- Un transducteur de haute pression de type TT7800-705.

## 4.2.1 Alimentation en gaz réactifs

Le système est alimenté en hydrogène et en air par des bouteilles commerciales pressurisées. Le banc d'essai conditionne les gaz avant de les envoyer vers la PàC. Il régule les débits au moyen de contrôleurs de débit-masse, les pressions par le biais de contrôleurs de contre-pression et le taux d'humidification des gaz grâce à des ballons d'humidification.



FIGURE 4.4 – Schéma structurel du banc d'essai

#### 4.2.2 Gestion de l'eau

L'eau présente dans les gaz réactifs est introduite au moyen de ballons d'humidification. Les gaz réactifs traversent les ballons, situés l'un à l'anode et l'autre à la cathode pour atteindre un taux d'humidification proche de la saturation. Ensuite ils circulent dans des conduites en Nafion® à l'intérieur des ballons qui sont remplis d'eau dés-ionisée. Le Nafion®permet le passage de la vapeur d'eau vers les gaz. L'alimentation en eau dés-ionisée se fait par une pompe interne au banc.

#### 4.2.3 Gestion de la chaleur

La température de cellule, la température de préchauffe des gaz et la température des ballons d'humidification sont régulées par des contrôleurs auto-adaptatifs de type  $Love Controllers^1$ . Ils contrôlent les températures au moyen de résistances chauffantes.

**Température de la PàC.** Il est à noter qu'une monocellule ne produit pas beaucoup de chaleur, des cartouches chauffantes sont donc insérés dans des cavités présentes dans les plaques de maintien pour un contrôle en température de la PàC. La régulation de la température ne comprend pas de circuit d'eau ou de ventilation pour son refroidissement. Le capteur de température au niveau de la cellule est un thermocouple situé côté cathode, dans une autre cavité de la plaque de maintien : cette température est considérée comme étant la température moyenne de l'ensemble du montage.

**Températures des ballons d'humidification.** Des thermocouples mesurent la température de l'eau à l'intérieur des ballons entourés de rubans chauffants. Les ballons sont

<sup>1.</sup> Produit de la compagnie Dwyer Instruments





(a) Contrôleur de température Love Controller (b) Contrôleur de débit massique : MKS Instru-16A ment 1179 A



(c) Transducteur de contre-pression : MSP 300-100-P-4-N-1



(d) Contrôleur de contre-pression : Booster 20812BP

FIGURE 4.5 – Composants du banc d'essai

isolés et contrôlés en température pour réguler le taux d'humidification des gaz.

**Températures de préchauffe des gaz.** Une fois les gaz conditionnés, ils circulent dans un tube jusqu'aux entrées de la PàC. Pendant ce trajet, il est important de maintenir les gaz à la température de consigne, pour conserver le taux d'humidification des gaz et éviter les phénomènes de condensation ou d'évaporation avant l'entrée dans la PàC. Dans ce but, les conduites de gaz sont équipées de gaines chauffantes.

#### 4.2.4 Gestion de la puissance produite

Le banc d'essai contient une charge électronique. Celle-ci simule la présence d'une charge réelle aux bornes de la PàC. Elle fonctionne en trois modes différents : son pilotage permet d'imposer la tension aux bornes de la PàC, le courant fourni par la PàC, ou la puissance délivrée.

## 4.2.5 Supervision et contrôle

Les données collectées par les différents capteurs sont recueillies par un module Lab-Jack ®, qui est un système professionnel d'acquisition de données et de contrôle à connexion USB. Les informations sont ensuite collectées et traitées au moyen d'un ordinateur connecté en permanence au banc d'essai, équipé d'un système de supervision et de contrôle.

#### Description de l'interface utilisateur Labview

Le banc d'essai FCT est fourni avec une interface Homme/Machine d'acquisition, de supervision et de contrôle (*SCDA*, *(Supervisory Control and Data Acquisition)*. Le SCDA utilisé ici pilote les actionneurs et les capteurs du banc d'essai pour un contrôle des conditions opératoires et la collecte des données expérimentales.

Le SCDA est implémenté sous la plateforme LabView®. LabView®(pour Laboratory Virtual Instrument Engineering Workbench, est un logiciel de conception de systèmes de mesure et de contrôle orienté flux de données et basé sur un langage graphique). L'architecture du code est défini par l'élaboration d'un diagramme. Ce diagramme est lié à une interface graphique nommée face-avant, personnalisable par l'utilisateur, qui est véritablement l'interface via laquelle l'utilisateur interagit avec le système. L'ensemble diagramme/face-avant constitue un VI (Virtual Instrument). La face-avant du VI qui constitue le SCDA du banc d'essai est présentée en Figure 4.6.

Au moyen du SCDA, les grandeurs imposables sont :

- La tension ou le courant d'appel de la charge électronique,
- les différentes températures : température de PàC, températures de gaz en entrée de PàC à l'anode et à la cathode, températures dans les ballons d'humidification à l'anode et à la cathode,
- les contre-pressions en sortie d'anode et de cathode,
- et les débits ou les surstœchiométries d'entrée à l'anode et à la cathode.

Le SCDA cadence et organise le rapatriement des valeurs délivrées par les différents capteurs présents dans le système. Les grandeurs mesurées sont collectées et inscrites dans un fichier généré par LabView<sup>®</sup>. Le Tableau 4.2 répertorie les grandeurs mesurées et/ou contrôlées par le SCDA. Des sous-VI supplémentaires sont accessibles pour la caractérisation de la PàC. Ils permettent de réaliser :

- des courbes de polarisation,
- des courbes d'impédance,
- des cycles de charge,
- et des tests de longue durée en conditions opératoires constantes.

# 4.3 Implantation de la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes

L'algorithme FTCS est exécuté sous MatLab<sup>®<sup>2</sup></sup>. Cependant, l'interface est entièrement développée par FCT sous une version ancienne de LabView<sup>®</sup>. Cette version ne permet pas d'intégrer directement des codes MatLab<sup>®</sup>dans les VI, à l'opposé des versions plus récentes.

Nous avons mis en place un protocole de communication basé sur un transfert de données par fichier entre les logiciels MatLab®et LabView®, qui répond aux critères suivants :

<sup>2.</sup> MatLab®est un logiciel de calcul numérique, MatLab®pour Matrix Laboratory



FIGURE 4.6 – Face-avant du VI de contrôle du banc d'essai

Grandeurs	Unité	Mesurée	Contrôlée
Tension de cellule	[V]	$\checkmark$	$\checkmark$
Densité de courant	$[A.cm^{-2}]$	$\checkmark$	$\checkmark$
Température de cellule	$[^{o}C]$	$\checkmark$	$\checkmark$
Température d'humidification côté anode	$[^{o}C]$	$\checkmark$	$\checkmark$
Température d'humidification côté cathode	$[^{o}C]$	$\checkmark$	$\checkmark$
Température de préchauffe des gaz côté anode	$[^{o}C]$	$\checkmark$	$\checkmark$
Température de préchauffe des gaz côté cathode	$[^{o}C]$	$\checkmark$	$\checkmark$
Pression de sortie anodique	[bar]	$\checkmark$	$\checkmark$
Pression de sortie cathodique	[bar]	$\checkmark$	$\checkmark$
Pression d'entrée anodique	[bar]	$\checkmark$	×
Pression d'entrée cathodique	[bar]	$\checkmark$	×
Perte de charge anodique	[bar]	$\checkmark$	$\checkmark$
Perte de charge cathodique	[bar]	$\checkmark$	$\checkmark$
Débit d'entrée à l'anode	[sccm]	$\checkmark$	$\checkmark$
Débit de sortie à l'anode	[sccm]	×	×
Débit d'entrée à la cathode	[sccm]	$\checkmark$	$\checkmark$
Débit de sortie à la cathode	[sccm]	×	×
Débit de méthanol	$[ml.min^{-1}]$	$\checkmark$	$\checkmark$

TABLE 4.2 – Données expérimentales collectées au moyen du banc d'essai



FIGURE 4.7 – Module LabView®pour la communication avec MatLab®

- transfert de données en lecture entre le SCDA-Labview et le contrôle-MatLab,
- transfert des variables de commande en écriture entre le contrôle-MatLab et le SCDA-LabView.

En prenant comme base l'interface de contrôle déjà présente, une communication artificielle entre LabView®et MatLab®est mise en place au moyen d'un VI supplémentaire. La Figure 4.7 présente la face-avant du VI ajouté, qui assure le cadencement de la communication.

LabView®et MatLab®communiquent via deux fichiers textes. Le principe de fonctionnement est exposé dans la Figure 4.8.

Le premier fichier est en écriture par LabView®et contient les mesures nécessaires à l'algorithme de commande. Il est en lecture par MatLab®pour l'utilisation des données. Le second fichier est en écriture par MatLab®et contient les valeurs des variables manipulées. Il est en lecture par LabView®et les valeurs qu'il contient sont imposées au système.

# 4.4 Expérimentations

Pour valider la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes, il est nécessaire d'induire des fautes dans le système. Ces fautes sont "simulées expérimentalement" en manipulant :

- les informations envoyées par le SCDA lorsqu'il s'agit de fautes d'auxiliaires,
- les conditions opératoires lorsqu'il s'agit de fautes de gestion de l'eau.

#### 4.4.1 Conditions opératoires en fonctionnement "normal"

Un fonctionnement "normal", ou encore un fonctionnement "sain", ou "sans faute", est un état de fonctionnement durant lequel les conditions opératoires sont optimales et ne favorisent pas l'apparition de fautes. Les conditions opératoires pour un fonctionnement sans faute sont définies comme suit :

• la température de PàC est maintenue à  $80^{\circ} C$ ,



FIGURE 4.8 – Schéma global de la mise en place du FTCS à l'aide de MatLab®et LabView®

- le taux d'humidification des gaz réactifs en entrée de PàC est défini à 80 % pour l'anode comme pour la cathode,
- Les contre-pressions en sortie d'ano<br/>de et de cathode sont maintenues à 300 kPa
- la surstœchiométrie anodique est fixée à 2, la surstœchiométrie cathodique est fixée à 5.

#### 4.4.2 Simulation de la faute

Les expériences d'engorgement et de fonctionnement sain sont effectuées par le biais du contrôle des conditions de fonctionnement. Plusieurs conditions de fonctionnement influencent le niveau d'hydratation de la PàC, telles que les niveaux d'humidités relatives de gaz  $(HR_{a/c})$ , les débits de gaz  $(m_{a/c})$ , la température de PàC  $(T_{cell})$ , les pressions de gaz de sortie  $(P_{a/c})$ , la géométrie de la PàC et la densité de courant (i).

Dans cette étude, les conditions d'engorgement sont générées expérimentalement par l'application d'une faible surstœchiométrie  $(S_{O_2})$  comme représenté sur la Figure 4.9. Tout d'abord, à partir de la diminution de la surstœchiométrie, l'évolution de la courbe de tension (V) et de la courbe de perte de charge à la cathode  $(\Delta P_c)$  résultent uniquement de la chute de  $S_{O_2}$ . Puis, dans une seconde étape, les évolutions résultent du processus d'engorgement. L'effet de la chute de  $S_{O_2}$  sur V et  $\Delta P_c$  est bien connue. D'une part, une faible  $S_{O_2}$  provoque une faible concentration en oxygène dans la couche de diffusion de gaz et de ce fait la baisse de tension de sortie de la PàC. D'autre part, la baisse de  $S_{O_2}$  au cours d'une opération à courant constant correspond à une réduction du débit d'air  $\dot{m}_{air}$ ,



FIGURE 4.9 – Engorgement causé par une chute de surtœchiométrie

provoquant une diminution de  $\Delta P_c$ .

Il est à noter que  $\Delta P_c$  réagit instantanément à la modification du débit d'air, tandis que la tension diminue plus lentement, probablement en raison de phénomène de diffusion.

L'engorgement est un mécanisme cumulatif complexe. Song *et al.* [92] proposent une description complète du mécanisme d'inondation et de son effet sur la chute de pression. La Figure 4.10 s'inspire de ces travaux et illustre le processus d'engorgement d'un canal. L'eau liquide à l'intérieur du canal et à la surface de la couche de diffusion de gaz n'est pas évaporé ou évacué en raison de conditions de fonctionnement inappropriées, comme un faible débit de gaz ou une basse température de PàC qui favorisent la condensation de l'eau et son accumulation. La taille des gouttelettes d'eau augmente par le phénomène de coalescence. Ces gouttelettes d'eau obstruent les pores de la couche de diffusion de gaz et bloquent le passage des gaz réactifs vers la couche active. Ce processus conduit à la diminution de la vitesse de réaction et donc de la tension. En outre, la formation de gouttelettes d'eau réduit la surface de section du canal, conduisant à une augmentation de la perte de charge de la cathode.

Les deux valeurs de surstœchiométrie sont 5 et 2, respectivement pour un fonctionnement sain et des conditions favorables à l'engorgement.



FIGURE 4.10 – Mécanisme de l'engorgement d'un canal

# Conclusion

Pour confronter les stratégies élaborées en simulation aux conditions réelles du contrôle en ligne, il est important de les tester sur des systèmes réels. Les bancs d'essai orientés Recherche et Développement sont des outils précieux pour tester et valider les méthodes développées.

Dans ce Chapitre, les équipements qui composent le dispositif expérimental utilisé au cours de cette thèse ont été présentés. Les caractéristiques de la PàC de type PEM de 50  $cm^2$  ont été exposées, ainsi que la composition du banc d'essai FCT. Une section a été consacrée à l'intégration du Contrôle Tolérant aux Fautes au sein du SCDA déjà présent et dans l'objectif d'éprouver la stratégie de Commande Tolérante aux Fautes. Pour finir, les conditions expérimentales des fonctionnements sain et en mode dégradé ont été présentées.

# Chapitre 5

# Le FTCS appliqué aux fautes de gestion de l'eau

# Sommaire

5.1	Desc	cription du FTCS 99
5.2	Diag	gnostic basé modèle
	5.2.1	Les indicateurs de l'engorgement et de l'assèchement 101
	5.2.2	Résidus et seuils de tolérance
	5.2.3	Modèle à base de Réseaux de Neurones
5.3	Mod	lule de reconfiguration et gestion des fausses alarmes 106
5.4	Con	trôleur PID auto-adaptatif
5.5	Rési	ultats expérimentaux
	5.5.1	Phase 1
	5.5.2	Phase 2 : engorgement et détection
	5.5.3	Phase 3 : recouvrement et engorgement
	5.5.4	Phase 4 et 5 : recouvrements et engorgements
	5.5.5	Effets du recouvrement sur la tension et la perte de charge $\ldots$ 112
	5.5.6	Exemple avec un seuil de tolérance différent

# Introduction

L'A GESTION DE L'EAU est une problématique importante dans le contrôle des PEMFCs car les dégradations qui y sont liées entraînent un vieillissement prématuré de la PàC ainsi qu'une chute de ses performances. Dans les cas extrêmes, un assèchement ou en engorgement important de la pile provoquent une défaillance du système et un arrêt de la production électrique.

Les différentes sources ainsi que les différents mécanismes de transport de l'eau dans la PEMFC sont complexes à modéliser, et la teneur en eau de la membrane  $\lambda$  n'est pas mesurable donc difficile à calculer (Equations détaillées dans la Sous-Section 1.4.2). Il est souvent préférable de quantifier l'état hydrique que de calculer  $\lambda$ . La Figure 5.1 liste les différents états hydriques possibles et les dégradations associées. Les états fortement asséché et fortement engorgé sont considérés comme des états extrêmes, pour lesquels les dégradations sont irréversibles. Les états intermédiaires provoquent une dégradation des performances.

Les fautes de gestion de l'eau peuvent être recouvrées tant que l'état hydrique de la PàC se trouve dans une zone intermédiaire aux états extrêmes (de asséché à engorgé). Pour un contrôle en temps-réel de l'état hydrique de la PEMFC, il est nécessaire de le caractériser, pour ensuite agir de manière appropriée sur les conditions opératoires. En cas de faute, les conditions opératoires sont modifiées afin de rapprocher l'état hydrique de l'état sain, afin d'éviter une évolution vers les états extrêmes et les dégradations associées. Cette méthodologie se rapporte au Contrôle Tolérant aux Fautes Actif (AFTCS) avec une reconfiguration du contrôleur.

Ce Chapitre est constitué de cinq sections. La première décrit la structure de la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes sélectionnée. Les sections deux à quatre sont dédiées aux différents composants du AFTCS, à savoir le module de diagnostic, le schéma de commande et le module de décision et de reconfiguration du régulateur. La cinquième et dernière section est consacrée à la validation expérimentale du FTCS.



FIGURE 5.1 – Les différents états hydriques d'une PEMFC et les types de dégradations associées

# 5.1 Description du FTCS

Le schéma ci-dessous représente la stratégie globale de FTCS mise en place. Les différents éléments de celui-ci seront présentés dans les sections suivantes.



FIGURE 5.2 – Schéma détaillé du AFTCS

La stratégie de contrôle sélectionnée est un AFTCS, dont le but est de réguler l'état hydrique de la PàC par le biais du contrôle de la surstœchiométrie en oxygène.

Les différents composants de cette stratégie sont :

- un module de diagnostic de l'état hydrique,
- un module de décision et de reconfiguration du contrôleur,
- et un schéma de commande.

Les état de l'art des Chapitres précédents font apparaître que les méthodes de diagnostic et de schémas de commande consacrés aux PEMFCs ont fait l'objet de nombreux travaux. Par contre, il apparait que les travaux les regroupant pour le développement de FTCS sont assez peu développés. Le fait que le diagnostic et le contrôle soient issus de deux champs disciplinaires différents explique cette distinction dans les recherches. Pour développer le AFTCS voulu, il est plus pertinent d'utiliser les travaux voués à chacun des composants principaux, à savoir le module de diagnostic et le schéma de commande, plutôt qu'aux rares travaux dédiés au AFTCS appliqué aux PEMFCs.

Un grand nombre de travaux est consacré au diagnostic des fautes de gestion de l'eau [21,31,32,45–60] (regroupées dans le Tableau 2.1), et assez peu sont dédiés au contrôle de l'état hydrique des PEMFCs [75,84].

Cependant, les stratégies de contrôle appliquées aux conditions opératoires des PEMFCs sont abondamment développées dans la littérature [72–85]. Certaines de ces conditions opératoires influencent directement le taux d'humidification de la PEMFC, ce sont les températures de PàC et d'humidification des gaz, la différence de pression entre l'anode et la cathode, et le débit des gaz réactifs. L'influence de ces paramètres sur l'état hydrique de la membrane et la présence d'eau liquide dans les canaux est développée dans le Chapitre 1, à la Section 1.7.1.

Le Contrôle Tolérant aux Fautes développé ici exploite les travaux existants en combinant :

- une méthode de diagnostic basée modèle pour détecter et l'isoler les fautes de gestion de l'eau, à savoir l'engorgement et l'assèchement,
- et un schéma de commande de type PID auto-adaptatif pour le contrôle de  $S_{O_2}$ .

La méthode de diagnostic sélectionnée est une méthode basée modèle développée par Yousfi Steiner *et al.* [48]. Les modèles utilisés sont à base de Réseaux de Neurones (RN) et décrivent les comportement sain de deux indicateurs de l'état hydrique de la membrane : la tension et la perte de charge à la cathode.

Le schéma de commande est un contrôleur PID auto-adaptatif régulant la valeur de la surstœchiométrie en oxygène, exposé dans les travaux de Damour *et al.* [73]. Il est composé d'un modèle à base de RN, et ses paramètres sont redéfinis à chaque période d'échantillonnage.

La Figure 5.2 représente la structure complète du AFTCS proposé, les différents composants sont développés dans les sections suivantes.

#### Choix de la faute et du mode de recouvrement de la faute

Dans le but de provoquer une série de fautes pendant une séquence continue de tests, l'engorgement est préféré à l'assèchement. L'engorgement est expérimentalement plus facile à mettre en œuvre que l'assèchement car son processus est plus long et plus simple à maîtriser. En effet, comme il a déjà été vu au Chapitre 1, le temps de sorption du Nafion est plus important que le temps nécessaire à la désorption. De plus, une membrane trop asséchée peut se craqueler et la mise en place d'une nouvelle membrane est alors nécessaire dès les premiers signes de trous.

Le choix du recouvrement de l'engorgement par la régulation de  $S_{O_2}$  est motivé par l'influence importante des débits sur l'état hydrique d'une PàC. Une augmentation des débits proportionnelle à la quantité d'eau produite revient à une augmentation de  $S_{O_2}$ , et l'eau liquide est alors chassée efficacement et rapidement (en quelques secondes) des canaux.

## 5.2 Diagnostic basé modèle

Le module de diagnostic est fortement inspiré des travaux développés par par Yousfi et al. [48,93], il isole trois états hydriques distincts : état engorgé, normal ou asséché. Le diagnostic basé modèle utilise la redondance analytique des paramètres indicateurs de l'engorgement dans le but de générer un résidu porteur d'information. Les redondances concernent les paramètres indicateurs des fautes de gestion de l'eau, à savoir la tension et la perte de charge, et sont estimées par le biais de modèles à Réseaux de Neurones.

#### 5.2.1 Les indicateurs de l'engorgement et de l'assèchement

La tension et la perte de charge à la cathode ont été sélectionnées car elles sont des indicateurs de l'assèchement et de l'engorgement. De plus, leur mesure est accessible sur le banc d'essai du  $LE^2P$ .

Les mesures de la tension et de la perte de charge sont complémentaires pour un diagnostic de l'état hydrique. La diminution de la valeur de la tension est symptomatique d'une faute : assèchement ou engorgement, si l'on ne considère que les fautes liées à la gestion de l'eau. La présence d'eau dans les canaux diminue la section de passage et cause ainsi une augmentation de la perte de charge entre l'entrée et la sortie des canaux cathodiques, ce qui fait en fait un indicateur de l'engorgement.

#### 5.2.2 Résidus et seuils de tolérance

Les résidus sont calculés à l'aide des mesures expérimentales de la tension  $(V_{exp})$  et de la perte de charge $(\Delta P_{exp})$ , et des sorties des modèles à base de Réseaux de Neurones  $(V_{RN})$  et  $(\Delta P_{RN})$ .

 $\epsilon_V$  est définie comme étant une erreur relative. Ce choix est motivé par le besoin d'évaluer le pourcentage de perte des performances électriques.  $\epsilon_{\Delta P}$  est une erreur brute. Les calculs des résidus sont détaillés dans les équations suivantes (Equations 5.1 et 5.2) :

$$\epsilon_V = \frac{V_{RN} - Vexp}{V_{RN}} \tag{5.1}$$

$$\epsilon_{\Delta P} = \Delta P_{exp} - \Delta P_{RN} \tag{5.2}$$

Les seuils de tolérance  $s_V$  pour  $\epsilon_V$ , et  $s_{\Delta P}$  pour  $\epsilon_{\Delta P}$  sont définis par une méthode d'essais-erreurs grâce à de nombreux essais en mode nominal et en mode dégradé.

Ils sont fixés à 5 % pour  $s_V$ , et à 0.5 kPa pour  $s_{\Delta P}$ . Les deux seuils de tolérance doivent être atteints pour que l'état hydrique soit considéré comme engorgé.

#### 5.2.3 Modèle à base de Réseaux de Neurones

Les modèles à base de Réseaux de Neurones sont des modèles empiriques. Comme il a été détaillé dans la Section 2.3.1, ils ont de nombreux avantages dont un temps de calcul très faible et la capacité à modéliser des systèmes non-linéaires. Dans Grondin *et al.* [8], la confrontation d'un modèle de connaissance de la PàC étudiée à un modèle à base de RN montre un temps de calcul jusqu'à cent fois plus faible et une précision d'un ordre

plus grand de l'approche comportementale par rapport à l'approche phénoménologique. Ces arguments posent les modèles à base de RN comme adéquats pour une utilisation en temps-réel.

L'identification d'un modèle à base de RN consiste en quatre étapes :

- la collecte des données expérimentales,
- la sélection de la structure du RN,
- l'identification des paramètres poids,
- et la validation.

#### La base de données

La constitution de la base de données est une étape importante, car la qualité et la richesse de la base conditionne la précision du modèle. La base est générée en appliquant aux entrées du système une série de créneaux pseudo-aléatoires en courant et en surstœchiométrie, dans le but de couvrir une large gamme des conditions opératoires. Les valeurs balayées sont de 8 à 12 A pour le courant et de 2 à 5 pour  $S_{O_2}$  (Figure 5.3). La base contient 710 points de mesure, espacés d'une période d'échantillonnage fixée à 4 s. 80 % de la base est réservée à l'identification du RN, tandis que les 20 % restants seront utilisés pour sa validation. La répartition des points pour les étapes d'apprentissage et de validation sont déterminés aléatoirement, en s'assurant que les données utilisées pour l'apprentissage sont différents de celles utilisées pour la validation.

#### La structure du RN

La structure sélectionnée pour chacun des deux modèles RN est un réseau de trois couches composée d'une couche d'entrée, d'une couche cachée et d'une couche de sortie. Le choix de mettre en œuvre une structure à une seule couche cachée, avec un nombre suffisant d'unités cachées, également appelées neurones, est motivée par les travaux de K. Hornik [94].

Les structures des réseaux sont décrits dans la Figure 5.4. La couche de sortie contient un neurone. Les neurones des trois couches sont reliées par des connexions pondérées, stockées dans une matrice  $\theta$ . La somme pondérée de chaque entrée de neurone est soumise à une fonction  $\phi$  qui conditionne leur activation des neurones. Les fonctions d'activation  $\phi$  sont définies comme une fonction tangente hyperbolique non linéaire dans la couche cachée, et comme une fonction linéaire dans la couche de sortie. Dans une approche comportementale, on définit respectivement u(t) et y(t), les vecteurs d'entrée et de sortie du système, représentatifs du comportement du système à l'instant t, et  $\hat{y}(t)$  la sortie de modèle, image de y(t). L'objectif de mise en œuvre temps-réel a dicté le choix d'une structure RN de type "récurrent".  $\hat{y}(t)$  est estimée grâce à l'information passée à l'instant  $t - \Delta t$ , où  $\Delta t$  est la période d'échantillonnage. Par conséquent, la couche d'entrée du RN comprend les entrées  $u(t - \Delta t)$  et dernière sortie simulée  $\hat{y}(t - \Delta t)$ , tel que décrit dans la Figure 5.5. Les entrées des deux RNs sont le débit massique  $\dot{m}_{air}$ , le courant de charge I, la pression différentielle  $\Delta P$  et la tension de sortie V.



FIGURE 5.3 – Base de données du RN

Ce modèle est identifié en utilisant une boîte à outil de MatLab®, développée par M. Norgaard [95] qui comprend la fonction NARX (auto-regressive non linéaire avec entrées exogènes).



(a) Architecture du RN pour l'estimation de la (b) Architecture du RN pour l'estimation de la perte de charge

FIGURE 5.4 – Architectures des Réseaux de Neurones utilisés



FIGURE 5.5 – Schéma bloc des Réseaux de Neurones

#### Apprentissage

L'apprentissage d'un RN consiste en l'optimisation de la dimension de la couche cachée et en l'estimation de ses paramètres internes grâce à des données expérimentales. Les paramètres du RN sont regroupés dans la matrice  $\theta$ . Leur estimation se fait par le biais de l'optimisation d'une fonction coût  $J(\theta)$ , basée sur un critère de convergence quadratique normal :

$$J(\theta) = \sum_{i=1}^{n} (y(t) - \hat{y} (u(t), \theta))^2$$
(5.3)

Où  $J(\theta)$  est la fonction coût, u(t) les entrées du système, y(t) la sortie,  $\hat{y}(t)$  la sortie estimée et  $\theta$  la matrice des poids. L'optimisation est stoppée lorsqu'au moins un des deux critères d'arrêt sont satisfaits. Le premier critère est basé sur le nombre d'itération de l'algorithme d'optimisation et le second sur la valeur de l'erreur quadratique moyenne (MSE, Mean Square Error).

Le Tableau 5.1 récapitule les paramètres de la structure des deux RN, ainsi que les paramètres d'apprentissage.

#### Validation

L'étape de validation est effectuée au moyen des 20 % de la base de données, soient 142 points qui n'ont pas été utilisés pendant la phase d'apprentissage. La Figure 5.6 présente les résultats de l'étape de validation et le Tableau 5.2 regroupe les erreurs de modélisation. Le signal d'erreur représentant l'erreur relative entre les valeurs réelles et estimées de V et  $\Delta P$  est présentée par la Figure 5.7. Deux critères sont utilisés pour évaluer les performances des RN : le RMSE (*Root Mean Square Error*) et le MRE (*Mean Relative Error*). Ils sont calculés à partir des Equations suivantes :

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n} \left(\hat{y}(i) - y(i)\right)^2}{n}}$$
(5.4)

Structure :		
Fonction d'activation pour la couche cachée	Fonction tangente hyperbolique	
Fonction d'activation pour la couche de sortie	Fonction linéaire	
Nombre de neurones pour $\Delta P$	20	
Nombre de neurones pour $V$	10	
Paramètres d'apprentissage :		
Algorithme d'optimisation	Levenberg-Marquard	
Critères d'arrêt 1	500 itérations	
Critères d'arrêt 2	$MSE = 1.10^{-7}$	
Temps de calcul :		
Temps de calcul pour $V$	$0.0264 \ s$	
Temps de calcul pour $\Delta P$	$0.0285 \ s$	

TABLE 5.1 – Récapitulatif des caractéristiques pour l'identification des RN



FIGURE 5.6 – Validation du RN : courbes

	RMSE	MRE $(\%)$
Erreur de modélisation sur $V$	0.0119	0.0130
Erreur de modélisation sur $\Delta P$	0.2914	0.0864

TABLE 5.2 – Validation du RN : erreurs de modélisation

Les résultats sont considérés comme satisfaisants pour l'utilisation des RN identifiés dans le module de diagnostic.



FIGURE 5.7 – Validation du RN : signaux d'erreur

# 5.3 Module de reconfiguration et gestion des fausses alarmes

Les erreurs de modélisation ou les incertitudes de mesures peuvent entraîner une mauvaise détection ou un mauvais isolement de la faute. Pour éviter les fausses alarmes, et l'inefficacité du FTCS, une stratégie de gestion des fausses alarmes est nécessaire.

Le principe est basé sur les résultats de diagnostic d'une séquence de 5 points expérimentaux successifs, ce qui correspond à une fenêtre glissante de 20 s. Si plus de la moitié des points est définie comme représentatif d'un état engorgé par le module de diagnostic, l'état hydrique est déterminé comme engorgé. Il est à noter que malgré le fait que cette stratégie retarde légèrement le déclenchement des mesures correctives, le ratio coûtsavantages est clairement positif. En effet, un retard de quelques secondes est préférable à une action corrective inadaptée.

Lorsque le diagnostic est posé, le mécanisme de reconfiguration détermine les mesures correctives à appliquer. Ce mécanisme de reconfiguration est basé sur une connaissance a priori du système. En cas de détection d'engorgement, la mesure corrective est défini comme l'augmentation de la valeur de consigne de  $S_{O_2}$  afin de drainer l'eau hors du canal cathodique.

 $S_{O_2}$  a deux valeurs prédéfinies, correspondant respectivement à une faible valeur (2) et une valeur élevée (5). Le mécanisme de reconfiguration décide si la valeur de  $S_{O_2}$  est appropriée à l'état hydrique. En cas d'état hydrique *normal*, la valeur sélectionnée est la valeur basse. En cas de détection d'engorgement,  $S_{O_2}$  est fixée à la valeur élevée.

# 5.4 Contrôleur PID auto-adaptatif

Après la détection et l'isolement de la faute, le mécanisme de reconfiguration entreprend des actions correctives, c'est à dire l'augmentation de  $S_{O_2}$ . Ce FTCS intègre un régulateur PID (Proportionnel Intégral Dérivé) auto-adaptatif à base de modèle neuronal. La sortie à réguler y(t) est  $S_{O_2}$ , e(t) est l'erreur de suivi de trajectoire et la variable manipulée u(t) est le débit d'air en entrée de cathode.

Ce régulateur PID auto-adaptatif opère une mise à jour des paramètres à chaque période d'échantillonnage, selon le point de fonctionnement. Cette mise à jour des paramètres du pID autour du point de fonctionnement offre l'avantage de prendre en compte les nonlinéarités du système. Ainsi cet algorithme permet de tirer profit de la simplicité de mise en œuvre d'un PID tout en l'adaptant à un système non linéaire. Une partie de ce contrôleur, un modèle RN simule le comportement de la PàC. La linéarisation instantanée de cette sortie du modèle est couplée à une loi de contrôle GMV (*General Minimum Variance*), ce qui permet la mise à jour en ligne des paramètres du PID. Les paramètres optimaux sont calculés grâce à une fonction coût L (Equation 5.6), dont l'optimisation est effectuée par le biais d'un algorithme non itératif, avec un temps de calcul assez faible.

$$L = \left(y_{set}(t + \Delta t) - y^{lin}(t + \Delta t)\right)^2 + \mu \Delta u^2(t)$$
(5.6)

Où  $y_{set}$  est la consigne,  $y^{lin}$  désigne la sortie estimée par le modèle linéarisé,  $\mu$  est le paramètre de pondération, et  $\Delta u$  la variation entre u(t) et u(t-1). Avec,

$$\Delta u(t) = kc \left[ e(t) - e(t-1) + \frac{\Delta t}{\tau i} \left( e(t) - e(t-1) \right) + \frac{\tau d}{\Delta t} \left( e(t) - 2e(t-1) + e(t-2) \right) \right]$$
(5.7)

Où  $\Delta t$  est la période d'échantillonnage, et kc,  $\tau i$  et  $\tau d$ , sont les paramètres du PID.

Cette stratégie de commande a montré des résultats satisfaisants en suivi de consigne et en rejet de perturbations, quelles que soient les conditions de fonctionnement. Le PID auto-adaptatif montre aussi une robustesse face aux erreurs de modélisation. La validation expérimentale de la commande et sa description complète peut être consultée dans les travaux de *Damour et al.* [73].

#### 5.5 Résultats expérimentaux

Les tests sont effectués en temps-réel, au moyen du banc d'essais présenté au Chapitre 4. Pendant cette séquence, quatre faute d'engorgements ont pu être observés, diagnostiqués et recouvrés. La totalité de la séquence de tests est visible sur la Figure 5.8. On peut y observer cinq phases qui seront décrites ci-après.






FIGURE 5.9 – Phases des résultats expérimentaux

La séquence de tests comprend cinq phases, délimitées par les balises temporelles suivantes :  $t_1 = 206$  a  $t_2 = 1224$  a  $t_3 = 1804$  a  $t_4 = 2268$  a at  $t_5 = 2824$  a Cos phases correspondent

 $t_1=396\ s,\,t_2=1324\ s,\,t_3=1804\ s,\,t_4=2268\ s$  et  $t_5=2824\ s.$  Ces phases correspondent aux conditions opératoires suivantes :

- 1. De  $t_0 = 0 \ s$  à  $t_1$ : Conditions opératoires normales, paliers de courant,
- 2. de  $t_1$  à  $t_2$ : Conditions propices à l'engorgement (E1),
- 3. de  $t_2$  à  $t_3$ : Action de recouvrement puis retour aux conditions d'engorgement (**R1**),
- 4. de  $t_3$  à  $t_4$ : Action de recouvrement puis retour aux conditions d'engorgement(**R2**),
- 5. de  $t_4$  à  $t_5$ : Action de recouvrement puis retour aux conditions d'engorgement (**R3**).

Pour faciliter l'analyse des résultats expérimentaux, ces cinq phases sont repérées sur la Figure 5.9.

Les conditions opératoires nominales sont relevées dans le Tableau 5.3. Il est à rappeler que les engorgements sont provoqués par une diminution abrupte de la valeur de  $S_{O_2}$ .

# 5.5.1 Phase 1

La première partie du protocole expérimental correspond à une séquence dynamique, contenant des paliers de courant d'amplitude et de longueur différentes à surstœchiométrie constante, dans des conditions de fonctionnement nominal.  $S_{O_2}$  est fixée à la valeur appropriée de 5. Le courant est fixé consécutivement à 11, 8 et 10 A. Ces valeurs sont choisies

Paramètre	Valeur	Unité
$T_{cell}$	80	° C
$S_{O_2}$	5	-
$HR_{a/c}$	80	%
$P_{a/c}$	300	kPa

TABLE 5.3 – Conditions opératoires nominales

pour correspondre au fonctionnement nominal du système. Après le troisième créneau de courant, celui-ci est maintenu à 10 A jusqu'à la fin de la séquence de test.

Cette première phase a pour objectif de valider le modèle décrivant un comportement sain. Comme le montre la Figure 5.10, la tension simulée est proche de données expérimentales, même si une petite erreur de modélisation est perceptible (la valeur moyenne de l'erreur relative pendant cette phase est de 0.9 %8), ce qui souligne l'importance de la détermination des seuils. En effet, l'erreur de modélisation est en dessous du seuil de détection de 5 %, et aucune fausse alarme ne se produit. Un seuil de tolérance pour la tension suffisamment important réduit l'effet de l'erreur de modélisation sur la précision du diagnostic. Il est à noter que l'estimation de la chute de pression à la cathode est proche de la valeur expérimentale.



FIGURE 5.10 – Résultats expérimentaux : Phase 1

#### 5.5.2 Phase 2 : engorgement et détection

A partir de  $t = t_1$ , le courant I est maintenu à 10 A. La deuxième étape commence par une réduction brutale de  $S_{O_2}$ , ce qui signifie que  $\dot{m}_{air}$  est brusquement réduit. Comme il a été décrit dans la Sous-Section 4.4.2, la diminution de la  $S_{O_2}$  provoque dans un premier temps, une chute de la tension ainsi que de la perte de charge (la chute de la perte de charge est proportionnelle à la réduction des débits, comme le modélise la loi de Darcy,). Puis la chute de pression de la cathode augmente, atteint le seuil à  $t = 744 \ s$  et se stabilise à une valeur élevée, tandis que  $\epsilon_V$  reste inférieure au seuil  $s_V$ . La tension de sortie reste constante pendant un certain temps avant de diminuer et que  $\epsilon_V$  atteigne le seuil à  $t = 1324 \ s$ . Une fois les deux seuils atteints, l'engorgement est détecté.



FIGURE 5.11 – Résultats expérimentaux : Phase 2

### 5.5.3 Phase 3 : recouvrement et engorgement

Comme le montre la Figure 5.12, à  $t = t_2$ , après détection de la faute, le module de reconfiguration modifie la valeur de consigne de  $S_{O_2}$  en entrée du régulateur.  $S_{O_2}$  est augmentée de 2 au 5 pendant 24 s, ce qui constitue l'étape de recouvrement de la faute : l'eau s'évacue des canaux. Au cours de l'étape de recouvrement,  $\epsilon_{\Delta P}$  et  $\epsilon_V$  descendent en dessous des seuils de tolérance. L'état hydrique est de nouveau estimé sans faute par le module de diagnostic.

Les conditions opératoires sont par la suite modifiées pour un retour aux conditions favorables à un engorgement. Les résidus restent en dessous des seuils de tolérance, mais augmentent en raison d'un nouvel engorgement. Les seuils sont de nouveau atteints, à  $t = 1520 \ s$  pour  $\epsilon_{\Delta P}$ , et à  $t = 1804 \ s$  pour  $\epsilon_V$ .



FIGURE 5.12 – Résultats expérimentaux : Phase 3

#### 5.5.4 Phase 4 et 5 : recouvrements et engorgements

A  $t = t_3$  et à  $t = t_4$  (Figures 5.13 et 5.14), deux étapes de recouvrement sont exécutées, suivis d'un retour aux conditions favorables à l'engorgement. Pour chacune de ces phases, on peut observer que les résidus s'écartent du seuil pendant l'étape de recouvrement, puis s'en rapprochent pendant l'engorgement jusqu'à détection de la faute. Comme pour les détections précédentes, le seuil de tolérance  $s_{\Delta_P}$  est franchi bien avant le seuil de tolérance  $s_V$ . Pour la Phase 4, il existe un écart de 352 s entre le franchissement de  $s_{\Delta_P}$  et de  $s_V$ . Pour la Phase 5, l'écart est de 384 s.

#### 5.5.5 Effets du recouvrement sur la tension et la perte de charge

Dans le but d'évaluer l'efficacité des étapes de recouvrement répétées et de savoir comment les améliorer, les Figures 5.15a et 5.15b regroupent les quatre engorgements et les corrections des Phases 2, 3, 4 et 5.

La courbe labellisée E1 correspond à la Phase 2, c'est le premier engorgement de la séquence de test, aussi on considère que les valeurs de la tension et de la pression différentielle pendant cette Phase sont les valeurs de référence. Les courbes labellisées R1, R2 et R3 correspondent aux recouvrements suivis d'un retour aux conditions engorgeantes.

Les recouvrements successifs ont un impact positif sur les valeurs de V et de  $\Delta P$ . La Figure 5.15a montre une amélioration de la tension visible après chaque étape de recouvrement (courbes R1, R2 et R3), ainsi qu'un éloignement des résidus en-deçà des seuils de tolérance. Cependant la tension rechute rapidement. Il est à noter que l'étape de recou-



FIGURE 5.13 – Résultats expérimentaux : Phase 4



FIGURE 5.14 – Résultats expérimentaux : Phase 5





FIGURE 5.15 – Superposition des différents engorgements

vrement ne permet pas de revenir à la tension de sortie initiale. Néanmoins, après trois

corrections consécutives, la tension de sortie en régime asymptotique tend vers la tension initiale **E1**.

Sur les courbes décrivant la pression différentielle, contrairement aux courbes décrivant la tension (Figure 5.15b), l'effet des étapes de recouvrement successives est moins visible, bien que les pressions différentielles des courbes R1, R2 et R3 demeurent inférieures à celles de la courbe E1. On peut expliquer cette différence par le fait que les canaux sont bien désengorgés mais que les couches de diffusion restent gorgées d'eau. En effet, l'eau liquide étant en grande partie évacuée des canaux, la pression différentielle chute, cependant les pores de la couche de diffusion restent obstrués ce qui empêche une circulation des gaz vers la couche active et diminue ainsi la tension de sortie.

Les recouvrements successifs ont un impact positif sur les performances à court terme. Cependant les augmentations abruptes et répétées de  $S_{O_2}$  peuvent conduire à des dégradations irréversibles, comme la dégradation de la couche catalytique, la corrosion du carbone et la formation de trous dans la membrane. Il est donc important, pour des travaux futurs de repenser l'allure de l'étape de recouvrement.

#### 0.8 D1 et D2 V<sub>RN</sub> (V) 0.7 (V)0.6 0.5 500 1000 1500 2000 2500 15 Detection manuell 10 ε<sub>ν</sub> (%) seuil (%) 500 1000 1500 2000 2500 dP<sub>RN</sub> (kPa) dP<sub>exp</sub> (kPa) 0 ٥ 500 1000 1500 2000 2500 2 ε<sub>dP</sub> (kPa) seuil (kPa) 0 1000 1500 2000 500 2500 Temps (s)

# 5.5.6 Exemple avec un seuil de tolérance différent

FIGURE 5.16 – Résultats expérimentaux avec un seuil différent

La Figure 5.16 décrit une séquence de tests pour laquelle le seuil de tolérance pour la tension est fixé à 10 % au lieu de 5 %. Il est à noter que les résidus n'atteignent jamais les seuils de tolérance suffisamment longtemps pour que l'état de la PàC soit considéré comme engorgé. Les points D1 et D2 repérés sur la Figure sont des désengorgements spontanés,

c'est à dire que l'eau liquide est chassée des canaux sans modification de la surstœchiométrie. Ce phénomène est attribué à la géométrie particulière des canaux (en quadruple serpentins), et au fait que la PàC testée soit une monocellule : sous l'effet des débits de gaz en entrée, l'eau s'évacue évitant alors tout blocage complet des canaux.

Ces désengorgements spontanés empêchent une détection du processus d'engorgement, car le résidu sur la tension n'atteint pas le seuil de 10 % sur un intervalle suffisamment long. Il est aussi à noter que le désengorgement spontané n'évacue pas l'eau de manière efficace, et que la tension rechute aussitôt. Pour sortir de cet engorgement, la détection du défaut est réalisée manuellement, c'est à dire par une intervention humaine, dès le franchissement du seuil.

Cet exemple montre que la détermination d'un seuil de tolérance approprié est primordial pour une détection efficace de la faute, et qu'un seuil trop élevé empêche cette détection. Un seuil trop bas, quant à lui induirait des fausses alarmes liées aux erreurs de modélisation et aux incertitudes de mesure.

#### Remarque

A  $t = 1244 \ s$  et  $t = 1423 \ s$ , deux artéfacts sont visibles sur les courbes de  $V_{RN}$ ,  $\Delta P_{RN}$  et les courbes de résidus. Ces variations brusques des valeurs estimées par les RN sont dues à des valeurs nulles des débits cathodiques présentes dans le fichier en lecture par MatLab®. Puisque les valeurs expérimentales  $V_{exp}$  et  $\Delta P_{exp}$  ne semblent pas être affectées par ces valeurs de débits nuls, on peut conclure qu'en certains points, la valeur du débit fourni par le fichier de mesure ne reflète pas le fonctionnement réel du système. Ces valeurs nulles sont probablement issues de problèmes logiciels lors de l'écriture du fichier ou de problèmes internes au SCDA.

# Conclusion

Le FTCS proposé dans ce chapitre démontre une excellente efficacité en termes de diagnostic et de récupération des performances du système. Les résultats expérimentaux montrent que les engorgements sont détectés une fois que les seuils de tolérance sont atteints. En effet, les pertes de performances sont limitées à 5 %, grâce à la mise en œuvre en ligne d'un module de diagnostic et d'un contrôle approprié de  $S_{O_2}$ . De cette manière, le FTCS empêche des pertes de performances importantes et limite les risques de dégradations irréversibles. Cette stratégie améliore la stabilité et la fiabilité de la tension délivrée par la PàC, et limite les dégradations irréversibles et le vieillissement prématuré.

Les limitations à la généralisation de ce FTCS sont néanmoins multiples et des difficultés ont été rencontrées pendant les tests. La PàC utilisée étant une monocellule, les performances de celle-ci sont extrêmement sensibles à l'influence des situations expérimentales précédentes. Il est alors difficile de déterminer avec certitude l'état hydrique dans lequel se trouve la cellule, et cela complique l'élaboration de la base de données pour l'identification du modèle en mode nominal. De plus, les performances s'en trouvent fluctuantes et le modèle devient aisément obsolète, il doit être souvent réidentifié.

#### Remarque nº 1

Les seuils de tolérance  $s_V$  et  $s_{\Delta_P}$  ne sont pas franchis au même moment par les résidus  $\epsilon_V$  et  $\epsilon_{\Delta_P}$ . Le relevé des temps de franchissement montre que  $s_{\Delta_P}$  est le premier seuil atteint à chaque cas d'engorgement, creusant un écart d'au moins 284 s avec le franchissement de  $s_V$ . Ce constat indique que pour le diagnostic d'un engorgement, la supervision de la pression différentielle seule permettrait une détection plus rapide de quelques centaines de secondes, évitant la chute de la tension et de ce fait la perte de performances.

#### Remarque nº 2

En perspectives, il peut être noté que les essais ont été menés sur une installation en laboratoire où l'air est délivré à la PàC par des bouteilles industrielles sous pression. Ceci justifie le contrôle direct de  $S_{O_2}$  via le débit des gaz comme variable manipulée. Dans une installation commerciale, il est courant que l'air soit fourni par un compresseur d'air qui le puise dans l'atmosphère, il est alors habituel de contrôler  $S_{O_2}$  en manipulant la vitesse de rotation du compresseur, ou le courant qui l'approvisionne. Dans ce cas, les travaux présentés ici peuvent être adaptés au contexte d'une installation commerciale en apportant la modification suivante : le changement de la variable manipulée du contrôleur. A partir du résultat du module de diagnostic, le module de reconfiguration redéfini la consigne du contrôleur, qui manipule la vitesse de rotation du contrôleur (ou son courant d'approvisionnement) dans le but atteindre la valeur de  $S_{O_2}$  désirée.

# Conclusion générale

Dans ce mémoire, une stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes testée en temps-réel et dédiée à la gestion de l'eau dans une PEMFC a été présentée. L'objectif majeur de ces travaux est de développer une stratégie de contrôle appropriée des conditions opératoires pour pallier l'apparition de fautes de gestion de l'eau. Ces fautes affectant la durée de vie et les performances des PEMFCs, il est important de les détecter et d'agir sur les conditions opératoires pour rétablir un fonctionnement sain. La méthodologie sélectionnée consiste en la mise en place, à partir de technologies déjà existantes, un Contrôle Tolérant aux Fautes Actif (AFTCS), comprenant un module de diagnostic et un contrôleur reconfigurable.

Pour poser l'importance d'un Contrôle Tolérant aux Fautes, le premier Chapitre fut consacré à la technologie PEMFC, aux dégradations pouvant survenir pendant leur fonctionnement et à leurs causes. Les causes des dégradations sont appelées des fautes et sont à éviter. Dans ce but, une partie du Chapitre 1 est consacrée à l'analyse des dégradations et de leurs causes.

Le diagnostic des fautes est un composant essentiel du AFTCS présenté dans cette thèse. Afin de sélectionner la méthode de diagnostic la plus adéquate, le Chapitre 2 dresse un état de l'art des méthodes de diagnostic appliquées aux PEMFCs. Aussi le Chapitre 3 répertorie les différentes stratégies de contrôle classiques et pose la nécessité de l'adaptation de ces stratégies en cas de fautes.

Il a été important de choisir une méthode de diagnostic appropriée aux contraintes expérimentales et aux contraintes temps-réel dans l'objectif d'applications en ligne. La méthode de diagnostic basée modèle sélectionnée repose sur un calcul de résidus, dont la redondance analytique est obtenue par l'identification de modèles à Réseaux de Neurones. La rapidité de calcul des estimations des modèles RN est un atout considérable pour l'implémentation en ligne de cette méthode. A chaque période d'échantillonnage, les résidus (porteurs d'information sur l'état hydrique de la PàC) sont calculés grâce aux modèles et aux mesures expérimentales. Le dépassement des seuils de tolérance par ces résidus sont symptomatiques d'une faute, et l'association de ces symptômes fournit un diagnostic : état engorgé, état normal ou état asséché. Les tests expérimentaux ont porté sur la gestion d'un engorgement. Cette méthode de diagnostic montre de très bon résultats en temps-réel, malgré des difficultés expérimentales liées à l'utilisation de modèles : l'engorgement est détecté dès qu'il provoque une chute de tension de 5 %.

Le diagnostic de la faute est la première étape à la gestion de celle-ci. L'objectif de ce AFTCS est d'assurer une stabilité dans les performances de la PàC : en cas de faute, les performances doivent être rétablies. Il est possible de désengorger rapidement et efficacement une PàC en augmentant de manière adéquate les débits de gaz en entrée à la cathode. Ce constat a orienté le choix d'un contrôleur PID auto-adaptatif dédié à la régulation de la surstœchiométrie en oxygène. En cas d'engorgement, la valeur de la consigne en surstœchiométrie du régulateur PID est ajustée pour une évacuation des canaux de distribution. Avec un faible temps de calcul, ce régulateur PID est approprié à un usage en ligne.

L'implantation de la stratégie de Contrôle Tolérant aux Fautes complète dans le SCDA a permis de le tester en ligne sur une PEMFC de 50  $cm^2$ . En présence de défauts, les pertes de performances importantes ont été évitées (inférieures à 5 %), la PàC a gagné en stabilité et en fiabilité.

#### Perspectives

Bien que le Contrôle Tolérant aux Fautes ne soit pas une discipline nouvelle, son application aux systèmes à base de PEMFCs est encore peu développée. Utilisant des outils déjà validés comme une méthode de diagnostic basée modèle et un régulateur PID autoadaptatif, cette thèse ouvre un champ de possibilité pour un développement plus important du FTCS appliqué aux systèmes PàC.

Comme l'ont montré les tests en ligne, les résultats expérimentaux proposés dans ces travaux sont très prometteurs. Dans la perspective d'intégrer des outils low-tech pour des systèmes embarqués, plusieurs améliorations peuvent être envisagées, à toutes les étapes du développement, pour augmenter les capacités d'adaptation des stratégies FCTS et leur généricité, sans entraver leur implantabilité.

Les premières perspectives à ces travaux sont l'amélioration du FTCS présenté, tout d'abord par le perfectionnement de la méthode de diagnostic. En effet, la mise en place d'une méthode de diagnostic basée modèle est contraignante. En particulier pour l'identification de modèles empiriques, elle requiert un nombre de données considérable en vue d'une redondance analytique. Substituer à cette méthode des approches basées signal permettra de s'affranchir des problématiques liées à l'identification du modèle et de la détermination des seuils de tolérance associés qui est une étape aussi décisive que délicate. L'utilisation d'une méthode de diagnostic basée signal serait une solution pour pallier ces problèmes.

En outre, l'utilisation de méthodes n'utilisant que l'acquisition de la tension dispenserait de l'acquisition des mesures de pressions différentielles, et des contraintes associées pour un système commercial (la consommation d'énergie des auxiliaires, l'acquisition de signaux supplémentaires et les coûts associés en termes d'instrumentation et d'interfaçage). Dans ces deux objectifs, l'utilisation de la méthode de diagnostic basée sur la décomposition en modes empiriques [51] est une piste intéressante.

Parallèlement à l'étude d'une méthode de diagnostic basée signal, l'amélioration de la présente méthode de diagnostic est possible moyennant le développement de seuils de tolérance adaptatifs. Le calcul des seuils de tolérance est pour l'instant empirique, il peut être envisagé de les calculer en fonction des caractéristiques de la PàC, des conditions de fonctionnement et des erreurs de modélisation du modèle, s'inspirant de travaux déjà existant [96–98]. Les phénomènes de désengorgement spontané ainsi que les fausses alarmes dus à une mauvaise évaluation de ces seuils pourraient être ainsi évités.

Les effets des étapes de recouvrement successifs sont bénéfiques pour les performances à court terme. Cependant, comme il a été souligné au Chapitre 5, les augmentations abruptes et répétées de  $S_{O_2}$  peuvent conduire à des dégradations irréversibles sur le long terme (toutes liées à l'épuisement des gaz réactifs). Pour les éviter, une optimisation de l'étape de recouvrement est possible. L'allure des paliers de surstœchiométrie peut être optimisée d'une part en opérant un allongement du palier, et d'autre part en imposant des variations moins abruptes qu'un simple échelon, par exemple en appliquant une rampe jusqu'à obtenir la valeur de  $S_{O_2}$  voulue.

De manière plus générale, les tests expérimentaux sur le PID auto-adaptatif ont montré que celui-ci possède une grande capacité à absorber les erreurs de modélisation. Il serait intéressant d'utiliser sa robustesse pour un Contrôle Tolérant aux Fautes Passif, dans le cas de fautes d'auxiliaires.

# Bibliographie

- David Hart, Franz Lehner, Robert Rose, and Jonathan Lewis. The Fuel Cell Industry Review. Technical report, E4tech, 2014. 25, 76
- [2] Audi shows {A7} h-tron quattro, {VW} its fuel cell golf sportwagen. Fuel Cells Bulletin, 2014(12) :2, 2014. 31
- [3] Frano Barbir. *PEM fuel cells : theory and practice*. Academic Press, 2012. 31
- [4] Vladimir S Bagotsky. Fuel cells : problems and solutions, volume 56. John Wiley & Sons, 2012. 32
- [5] Fuel Cell Handbook. EG and G Services Parsons, Inc.Corporation, Science Applications International, 2000. 32
- [6] P. D. Tran, a. Morozan, S. Archambault, J. Heidkamp, P. Chenevier, H. Dau, M. Fontecave, a. Martinent, B. Jousselme, and V. Artero. A noble metal-free protonexchange membrane fuel cell based on bio-inspired molecular catalysts. *Chem. Sci.*, 6(3):2050–2053, 2015. 35
- [7] SJ Peighambardoust, S Rowshanzamir, and M Amjadi. Review of the proton exchange membranes for fuel cell applications. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(17):9349–9384, 2010. 35
- [8] B Grondin-Perez, Sébastien Roche, Carole Lebreton, Michel Benne, Cédric Damour, and Jean-Jacques Kadjo. Mechanistic Model versus Artificial Neural Network Model of a Single-Cell PEMFC. *Engineering*, 6(July) :418–426, 2014. 38, 101
- [9] L. Guzzella. Control oriented modelling of fuel-cell based vehicles. In Presentation in NSF Workshop on the Integration of Modeling and Control for Automative Systems. 38
- [10] DA McKay, WT Ott, and AG Stefanopoulou. Modeling, parameter identification, and validation of reactant and water dynamics for a fuel cell stack. In ASME 2005 International Mechanical Engineering Congress and Exposition, pages 1177–1186. American Society of Mechanical Engineers, 2005. 39, 41
- [11] J. C. Amphlett, R.M. Baumert, R.F. Mann, B.A. Peppley, P.R. Roberge, and T.J. Harris. Performance Modeling of the Ballard Mark IV Solid Polymer Electrolyte Fuel Cell. Journal of The Electrochemical Society, 142(1) :9, 1995. 39, 40, 58
- [12] Ronald F. Mann, John C. Amphlett, Michael a.I. Hooper, Heidi M. Jensen, Brant a. Peppley, and Pierre R. Roberge. Development and application of a generalised steadystate electrochemical model for a PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 86(1-2):173–180, 2000. 39, 58

- [13] Wenyin Gong and Zhihua Cai. Accelerating parameter identification of proton exchange membrane fuel cell model with ranking-based differential evolution. *Energy*, 59:356–364, 2013. 39
- [14] G. Naga Srinivasulu, T. Subrahmanyam, and V. Dharma Rao. Parametric sensitivity analysis of PEM fuel cell electrochemical Model. *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(22) :14838–14844, 2011. 39
- [15] T. E. Springer, T.A. Zawodzinski, and S. Gottesfeld. Polymer Electrolyte Fuel Cell Model. Journal of The Electrochemical Society, 138(8) :2334, 1991. 40, 41, 42, 43, 58
- [16] Tatsuhiro Okada, Gang Xie, Oddvar Gorseth, Signe Kjelstrup, Norito Nakamura, and Tomoaki Arimura. Ion and water transport characteristics of Nafion membranes as electrolytes. *Electrochimica Acta*, 43(24) :3741–3747, 1998. 40, 42, 58
- [17] J. Ramousse, J. Deseure, O. Lottin, S. Didierjean, and D. Maillet. Modelling of heat, mass and charge transfer in a PEMFC single cell. *Journal of Power Sources*, 145(2):416–427, 2005. 40, 42, 58
- [18] Sandip Dutta, Sirivatch Shimpalee, and JW Van Zee. Numerical prediction of massexchange between cathode and anode channels in a pem fuel cell. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44(11) :2029–2042, 2001. 41
- [19] James T Hinatsu, Minoru Mizuhata, and Hiroyasu Takenaka. Water uptake of perfluorosulfonic acid membranes from liquid water and water vapor. *Journal of the Electrochemical Society*, 141(6) :1493–1498, 1994. 42
- [20] Peter C Rieke and Nicholas E Vanderborgh. Temperature dependence of water content and proton conductivity in polyperfluorosulfonic acid membranes. *Journal of membrane Science*, 32(2):313–328, 1987. 42
- [21] Haluk Görgün, Murat Arcak, and Frano Barbir. An algorithm for estimation of membrane water content in PEM fuel cells. *Journal of Power Sources*, 157(1):389– 394, 2006. 42, 62, 66, 100
- [22] Wolfgang Schmittinger and Ardalan 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, May 2008. 45
- [23] Jinfeng Wu, Xiao Zi Yuan, Jonathan J. Martin, Haijiang Wang, Jiujun Zhang, Jun Shen, Shaohong Wu, and Walter Merida. A review of PEM fuel cell durability : Degradation mechanisms and mitigation strategies. *Journal of Power Sources*, 184(1):104– 119, September 2008. 45
- [24] Thomas J. Mason, Jason Millichamp, Tobias P. Neville, Paul R. Shearing, Stefaan Simons, and Daniel J L Brett. A study of the effect of water management and electrode flooding on the dimensional change of polymer electrolyte fuel cells. *Journal of Power Sources*, 242 :70–77, 2013. 45, 48
- [25] Tomoaki Uchiyama, Manabu Kato, and Toshihiko Yoshida. Buckling deformation of polymer electrolyte membrane and membrane electrode assembly under humidity cycles. *Journal of Power Sources*, 206:37–46, May 2012. 46

- [26] Kyung Don Baik, Bo Ki Hong, and Min Soo Kim. Effects of operating parameters on hydrogen crossover rate through Nafion?? membranes in polymer electrolyte membrane fuel cells. *Renewable Energy*, 57:234–239, 2013. 46
- [27] N. Yousfi-Steiner, Ph. 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(1) :130– 145, October 2009. 47
- [28] T. Ous and C. Arcoumanis. Degradation aspects of water formation and transport in Proton Exchange Membrane Fuel Cell : A review. *Journal of Power Sources*, 240 :558–582, October 2013. 47, 48
- [29] Pucheng Pei and Huicui Chen. Main factors affecting the lifetime of Proton Exchange Membrane fuel cells in vehicle applications : A review. Applied Energy, 125 :60–75, July 2014. 48
- [30] Hui Li, Yanghua Tang, Zhenwei Wang, Zheng Shi, Shaohong Wu, Datong Song, Jianlu Zhang, Khalid Fatih, Jiujun Zhang, Haijiang Wang, Zhongsheng Liu, Rami Abouatallah, and Antonio Mazza. A review of water flooding issues in the proton exchange membrane fuel cell. *Journal of Power Sources*, 178(1) :103–117, 2008. 48
- [31] 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 measurements. *Journal of Power Sources*, 159(2) :905–913, September 2006. 49, 59, 63, 66, 100
- [32] F Barbir, H Gorgun, and X Wang. Relationship between pressure drop and cell resistance as a diagnostic tool for PEM fuel cells. *Journal of Power Sources*, 141(1):96– 101, February 2005. 50, 62, 66, 100
- [33] N. Yousfi-Steiner, Ph. Moçotéguy, D. Candusso, 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(1):260– 274, August 2008. 50
- [34] J Wu, X Ziyuan, H Wang, M Blanco, 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, March 2008. 56
- [35] J Wu, X Ziyuan, H Wang, M Blanco, J Martin, and J Zhang. Diagnostic tools in PEM fuel cell research : Part IIPhysical/chemical methods. International Journal of Hydrogen Energy, 33(6) :1747–1757, March 2008. 56
- [36] A. Bazylak. Liquid water visualization in PEM fuel cells : A review. International Journal of Hydrogen Energy, 34(9) :3845–3857, May 2009. 57
- [37] Xiaozi Yuan, Haijiang Wang, Jian Colin Sun, and Jiujun Zhang. AC impedance technique in PEM fuel cell diagnosis :A review. *International Journal of Hydrogen Energy*, 32 :4365–4380, 2007. 57, 61
- [38] T Escobet, D Feroldi, S. de Lira, V Puig, J Quevedo, J Riera, and M Serra. Modelbased fault diagnosis in PEM fuel cell systems. *Journal of Power Sources*, 192(1):216– 223, 2009. 58

- [39] Denver Cheddie and Norman Munroe. Review and comparison of approaches to proton exchange membrane fuel cell modeling. *Journal of Power Sources*, 147(1-2):72-84, 2005. 58
- [40] R. Petrone, Z. Zheng, D. Hissel, M.C. 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, June 2013. 58, 61
- [41] Dawn M Bernardi and Mark W Verbrugge. Mathematical Model of a Gas Diffusion Electrode Bonded to a Polymer Electrolyte. 37(8) :1151–1163, 1991. 58
- [42] a. Saadi, M. Becherif, a. Aboubou, and M.Y. Ayad. Comparison of proton exchange membrane fuel cell static models. *Renewable Energy*, 56 :64–71, 2013. 59
- [43] Z. Zheng, R. Petrone, M.C. Péra, D. Hissel, M. Becherif, C. Pianese, N. Yousfi 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, July 2013. 60, 61
- [44] A Aitouche, S C Olteanu, and B Ould Bouamama. A Survey of Diagnostic of Fuel Cell Stack Systems. In 8th IFAC Symposium on Fault Detection, Supervision and Safety of Technical Processes, Mexico City, Mexico, 2012. 61
- [45] D Hissel, M.C Péra, and J.M Kauffmann. Diagnosis of automotive fuel cell power generators. Journal of Power Sources, 128(2) :239–246, April 2004. 62, 66, 100
- [46] Judith O'Rourke, Manikandan Ramani, and Murat Arcak. In situ detection of anode flooding of a PEM fuel cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 34(16):6765– 6770, August 2009. 62, 66, 100
- [47] N. Yousfi Steiner, D. Candusso, D. Hissel, and P. Moçoteguy. Model-based diagnosis for proton exchange membrane fuel cells. *Mathematics and Computers in Simulation*, 81(2):158–170, October 2010. 62, 66, 100
- [48] N. Yousfi Steiner, D. Hissel, Ph. 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(4) :3067–3075, February 2011. 62, 66, 100, 101
- [49] Nadia Yousfi Steiner, Daniel Hissel, Philippe Moçotéguy, and Denis Candusso. Non intrusive diagnosis of polymer electrolyte fuel cells by wavelet packet transform. *In*ternational Journal of Hydrogen Energy, 36(1):740–746, January 2011. 62, 66, 100
- [50] S. Giurgea, R. Tirnovan, D. Hissel, and R. Outbib. An analysis of fluidic voltage statistical correlation for a diagnosis of PEM fuel cell flooding. *International Journal* of Hydrogen Energy, 38(11) :4689–4696, April 2013. 63, 66, 100
- [51] Cédric Damour, Michel Benne, Brigitte Grondin-Perez, Miloud Bessafi, Daniel Hissel, and Jean-Pierre Chabriat. Polymer electrolyte membrane fuel cell fault diagnosis based on empirical mode decomposition. *Journal of Power Sources*, 299 :596–603, December 2015. 63, 66, 100, 120

- [52] W. Mérida, D.a. Harrington, J.M. Le Canut, and G. McLean. Characterisation of proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) failures via electrochemical impedance spectroscopy. *Journal of Power Sources*, 161(1) :264–274, October 2006. 63, 66, 100
- [53] S. Chevalier, D. Trichet, B. Auvity, J.C. 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, August 2013. 63, 66, 100
- [54] S. Tant, S. Rosini, P.-X. Thivel, F. Druart, a. Rakotondrainibe, T. Geneston, and Y. Bultel. An algorithm for diagnosis of proton exchange membrane fuel cells by electrochemical impedance spectroscopy. *Electrochimica Acta*, 135 :368–379, 2014. 64, 66, 100
- [55] Zhixue Zheng, Marie-Cécile Péra, Daniel Hissel, Mohamed Becherif, Kréhi-Serge Agbli, and Yongdong Li. A double-fuzzy diagnostic methodology dedicated to online fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell stacks. *Journal of Power Sources*, 271:570–581, 2014. 64, 66, 100
- [56] K. Sugiura, M. Yamamoto, Y. Yoshitani, K. Tanimoto, a. Daigo, and T. Murakami. Performance diagnostics of PEFC by current-pulse method. *Journal of Power Sources*, 157(2):695–702, July 2006. 64, 66, 100
- [57] Thomas Kadyk, Richard Hanke-Rauschenbach, and Kai Sundmacher. Nonlinear frequency response analysis of PEM fuel cells for diagnosis of dehydration, flooding and CO-poisoning. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 630(1-2) :19–27, May 2009. 64, 66, 100
- [58] Andreas Miege, Florian Steffen, Thomas Luschtinetz, Sven Jakubith, and Maik Freitag. Real Time Water Detection for Adaptive Control Strategy in Pemfc-systems. *Energy Procedia*, 29:431–437, January 2012. 64, 66, 100
- [59] M.A. Rubio, A. Urquia, and S. Dormido. Diagnosis of performance degradation phenomena in PEM fuel cells. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(7):2586– 2590, April 2010. 64, 66, 100
- [60] Ali Mohammadi, Abdesslem Djerdir, Nadia Yousfi Steiner, and Davood Khaburi. Advanced diagnosis based on temperature and current density distributions in a single PEMFC. International Journal of Hydrogen Energy, May 2015. 65, 66, 100
- [61] R Quan, S Quan, L Huang, and C Xie. Fault Diagnosis and Fault-Tolerant Control for Multi-Sensor of Fuel Cell System Using Two-level Neural Networks. *Journal of Computational Information Systems*, 11:3703–3711, 2010. 65, 68, 75, 80
- [62] M.M. Kamal, D.W. Yu, and D.L. Yu. Fault detection and isolation for PEM fuel cell stack with independent RBF model. *Engineering Applications of Artificial Intelligence*, 28:52–63, February 2014. 65, 68
- [63] Quan Yang, Abdel Aitouche, and Belkacem Ould Bouamama. Détection de fautes par redondance analytique de l'alimentation en air d'une pile à combustible de type pem. In Conférence Internationale Francophone de l'Automatique (CIFA), pages 1–6, 2010. 66, 68

- [64] S. de Lira, V. Puig, J. Quevedo, and a. Husar. LPV observer design for PEM fuel cell system : Application to fault detection. *Journal of Power Sources*, 196(9) :4298–4305, May 2011. 66, 68
- [65] A Rosich, R Sarrate, and F Nejjari. On-line model-based fault detection and isolation for PEM fuel cell stack systems. *Applied Mathematical Modelling*, 38(11-12) :2744– 2757, 2014. 67, 68
- [66] Meng Shao, Xin-Jian Zhu, Hong-Fei Cao, and Hai-Feng Shen. An artificial neural network ensemble method for fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell system. *Energy*, 67 :268–275, April 2014. 67, 68
- [67] Zhongliang Li, Rachid Outbib, Stefan Giurgea, Daniel Hissel, and Yongdong Li. Fault detection and isolation for Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell systems by analyzing cell voltage generated space. *Applied Energy*, 148 :260–272, 2015. 67, 68
- [68] D. Benouioua, D. Candusso, F. Harel, and L. Oukhellou. Fuel cell diagnosis method based on multifractal analysis of stack voltage signal. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(5) :2236–2245, February 2014. 67, 68
- [69] Benoit Marx. Contribution to the Control and Diagnosis of Linear Descriptor Systems. Theses, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, December 2003. Présidente : Sylviane Gentil (Pr INPG); Rapporteurs : Mohamed Darouach (Pr INPL), Qingha Zhang (DR INRIA); Examinateur : Thomas Stemmelen (ingénieur R&D Crouzet);. 70
- [70] Jay Tawee Pukrushpan. Modeling And Control Of Fuel Cell Systems And Fuel Processors. PhD thesis, University of Michigan, 2003. 70
- [71] Diego Feroldi. CONTROL AND DESIGN OF PEM FUEL CELL-BASED SYS-TEMS. PhD thesis, Universitat Politecnica de Catalunya, 2009. 70
- [72] Fu-Cheng Wang and Chin-Chun Ko. Multivariable robust PID control for a PEMFC system. International Journal of Hydrogen Energy, 35(19) :10437–10445, October 2010. 71, 100
- [73] C. Damour, M. Benne, C. Lebreton, J. Deseure, and B. Grondin-Perez. Real-time implementation of a neural model-based self-tuning PID strategy for oxygen stoichiometry control in PEM fuel cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(24):12819– 12825, August 2014. 71, 100, 107
- [74] Diego Feroldi, Maria Serra, and Jordi Riera. Performance improvement of a PEMFC system controlling the cathode outlet air flow. *Journal of Power Sources*, 169(1):205– 212, June 2007. 71, 100
- [75] Liyan Zhang, Mu Pan, and Shuhai Quan. Model predictive control of water management in PEMFC. Journal of Power Sources, 180(1):322–329, May 2008. 71, 76, 100
- [76] Chrysovalantou Ziogou, Simira Papadopoulou, Michael C. Georgiadis, and Spyros Voutetakis. On-line nonlinear model predictive control of a PEM fuel cell system. *Journal of Process Control*, 23(4) :483–492, April 2013. 71, 100

- [77] Yuehong Zhao and Efstratios Pistikopoulos. Dynamic modelling and parametric control for the polymer electrolyte membrane fuel cell system. *Journal of Power Sources*, 232 :270–278, June 2013. 71, 100
- [78] C Damour, M Benne, J A Kadjo, and J Deseure. On-Line PEMFC Control Using Parameterized Nonlinear Model-Based Predictive Control. *Fuel Cells*, (0) :1–8, 2014. 71, 86, 100
- [79] M. Becherif and D. Hissel. MPPT of a PEMFC based on air supply control of the motocompressor group. International Journal of Hydrogen Energy, 35(22) :12521– 12530, November 2010. 72, 100
- [80] Nicu Bizon. Tracking the maximum efficiency point for the FC system based on extremum seeking scheme to control the air flow. Applied Energy, 129 :147–157, September 2014. 72, 100
- [81] Imad Matraji, Salah Laghrouche, Samir Jemei, and Maxime Wack. Robust control of the PEM fuel cell air-feed system via sub-optimal second order sliding mode. *Applied Energy*, 104 :945–957, April 2013. 72, 100
- [82] Michael a. Danzer, Jörg Wilhelm, Harald Aschemann, and Eberhard P. Hofer. Modelbased control of cathode pressure and oxygen excess ratio of a PEM fuel cell system. *Journal of Power Sources*, 176(2) :515–522, February 2008. 72, 100
- [83] R. da Fonseca, E. Bideaux, M. Gerard, B. Jeanneret, M. Desbois-Renaudin, and a. Sari. Control of PEMFC system air group using differential flatness approach : Validation by a dynamic fuel cell system model. *Applied Energy*, 113 :219–229, January 2014. 72, 100
- [84] Cédric Damour, Michel Benne, Brigitte Grondin-Perez, Jean-Pierre Chabriat, and Bruno 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, February 2015. 72, 100
- [85] M. Hilairet, M. Ghanes, O. Béthoux, V. Tanasa, J-P. Barbot, and D. Normand-Cyrot. A passivity-based controller for coordination of converters in a fuel cell system. *Control Engineering Practice*, 21(8) :1097–1109, August 2013. 72, 100
- [86] Mufeed Mahmoud, Jin Jiang, and Youmin Zhang. Active fault tolerant control systems : stochastic analysis and synthesis, volume 287. Springer Science & Business Media, 2003. 77
- [87] Jin Jiang and Xiang Yu. Fault-tolerant control systems : A comparative study between active and passive approaches. Annual Reviews in Control, 36(1):60–72, April 2012.
  78
- [88] Ingimundarson Ari and Sanchez Pena Ricardo S. Using the Unfalsified Control Concept to Achieve Fault Tolerance. 17th World Congress The International Federation of Automatic Control, pages 1236–1242, July 2008. 79, 80
- [89] Vicenç Puig, Diego Feroldi, and Maria Serra. Fault-tolerant MPC control of PEM fuel cells. 17th World Congress IFAC ..., pages 11112–11117, 2008. 80

- [90] Liangfei Xu, Jianqiu Li, Minggao Ouyang, Jianfeng Hua, and Xiangjun Li. Active fault tolerance control system of fuel cell hybrid city bus. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(22) :12510–12520, 2010. 81
- [91] Haroune Aouzellag, Kaci Ghedamsi, and Djamel Aouzellag. Energy management and fault tolerant control strategies for fuel cell/ultra-capacitor hybrid electric vehicles to enhance autonomy, efficiency and life time of the fuel cell system. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(22) :7204–7213, June 2015. 81
- [92] Mancun Song, Pucheng Pei, Hongshan Zha, and Huachi Xu. Water management of proton exchange membrane fuel cell based on control of hydrogen pressure drop. *Journal of Power Sources*, 267 :655–663, 2014. 94
- [93] Nadia Yousfi Steiner. Diagnostic non intrusif de groupes électrogènes à Piles à Combustible de type PEFMC. PhD thesis, UNIVERSITE DE FRANCHE-COMTE, 2009.
   101
- [94] Kurt Hornik. Approximation Capabilities of Muitilayer Feedforward Networks. Neural Networks, 4(1989) :251–257, 1991. 102
- [95] Magnus Nø rgaard. Neural Network Based System Identification TOOLBOX. Technical report, Tech. Report. 00- E-891, Department of Automation, Technical University of Denmark, 2000. 103
- [96] D Sauter, F Hamelin, MA Ghetie, and C Fonte. Adaptive residual evaluation of model uncertainties : some methods and results. *Engineering Simulation*, 13 :773–788, 1996. 120
- [97] X Ding and PM Frank. Frequency domain approach and threshold selector for robust model-basedfault detection and isolation. 1991. 120
- [98] Jerold L Weiss. Threshold computations for detection of failures in siso systems with transfer function errors. In American Control Conference, 1988, pages 2213–2218. IEEE, 1988. 120



# LETTRE D'ENGAGEMENT DE NON-PLAGIAT

Je, soussigné(e) Carole LEBRETON, en ma qualité de doctorant(e) de l'Université de La Réunion, déclare être conscient(e) que le plagiat est un acte délictueux passible de sanctions disciplinaires. Aussi, dans le respect de la propriété intellectuelle et du droit d'auteur, je m'engage à systématiquement citer mes sources, quelle qu'en soit la forme (textes, images, audiovisuel, internet), dans le cadre de la rédaction de ma thèse et de toute autre production scientifique, sachant que l'établissement est susceptible de soumettre le texte de ma thèse à un logiciel anti-plagiat.

Fait à ...Sainte-Clotilde..., le (date) 02 novembre 2015

Signature :

**Extrait du Règlement intérieur de l'Université de La Réunion** (validé par le Conseil d'Administration en date du 11 décembre 2014)

# Article 9. Protection de la propriété intellectuelle – Faux et usage de faux, contrefaçon, plagiat

L'utilisation des ressources informatiques de l'Université implique le respect de ses droits de propriété intellectuelle ainsi que ceux de ses partenaires et plus généralement, de tous tiers titulaires de tes droits.

En conséquence, chaque utilisateur doit :

- utiliser les logiciels dans les conditions de licences souscrites ;

- ne pas reproduire, copier, diffuser, modifier ou utiliser des logiciels, bases de données, pages Web, textes, images, photographies ou autres créations protégées par le droit d'auteur ou un droit privatif, sans avoir obtenu préalablement l'autorisation des titulaires de ces droits.

#### La contrefaçon et le faux

Conformément aux dispositions du code de la propriété intellectuelle, toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle d'une œuvre de l'esprit faite ans le consentement de son auteur est illicite et constitue un délit pénal.

L'article 444-1 du code pénal dispose : « Constitue un faux toute altération frauduleuse de la vérité, de nature à cause un préjudice et accomplie par quelque moyen que ce soit, dans un écrit ou tout autre support d'expression de la pensée qui a pour objet ou qui peut avoir pour effet d'établir la preuve d'un droit ou d'un fait ayant des conséquences juridiques ».

L'article L335\_3 du code de la propriété intellectuelle précise que : « Est également un délit de contrefaçon toute reproduction, représentation ou diffusion, par quelque moyen que ce soit, d'une œuvre de l'esprit en violation des droits de l'auteur, tels qu'ils sont définis et réglementés par la loi. Est également un délit de contrefaçon la violation de l'un des droits de l'auteur d'un logiciel (...) ».

Le plagiat est constitué par la copie, totale ou partielle d'un travail réalisé par autrui, lorsque la source empruntée n'est pas citée, quel que soit le moyen utilisé. Le plagiat constitue une violation du droit d'auteur (au sens des articles L 335-2 et L 335-3 du code de la propriété intellectuelle). Il peut être assimilé à un délit de contrefaçon. C'est aussi une faute disciplinaire, susceptible d'entraîner une sanction.

Les sources et les références utilisées dans le cadre des travaux (préparations, devoirs, mémoires, thèses, rapports de stage...) doivent être clairement citées. Des citations intégrales peuvent figurer dans les documents rendus, si elles sont assorties de leur référence (nom d'auteur, publication, date, éditeur...) et identifiées comme telles par des guillemets ou des italiques.

Les délits de contrefaçon, de plagiat et d'usage de faux peuvent donner lieu à une sanction disciplinaire indépendante de la mise en œuvre de poursuites pénales.