



*Ministero dell'Istruzione,
dell'Università e della Ricerca*

UNIVERSITY OF SALERNO - UNISA
DEPARTEMENT OF INDUSTRIAL ENGINEERING - DIIN
*Dottorato di Ricerca in Ingegneria Meccanica
XII Ciclo N.S. (2011-2013)*

UNIVERSITY OF FRANCHE-COMTE - UFC
FEMTO-ST LABORATORY / FCLAB INSTITUT
*Ecole Doctorale de l'Université de Franche-Comté :
spécialité Sciences pour l'Ingénieur et Microtechniques*

CO-DIRECTION of the PhD. Thesis:

***“Electrochemical Impedance Spectroscopy for the on-board diagnosis of PEMFC
via on-line identification of Equivalent Circuit Model parameters”***

Ing. Raffaele Petrone

Tutors

***Ch.mo Prof. Cesare Pianese
Dr. Ing. Marco Sorrentino
M. le Pr. Daniel Hissel
M.me le Pr. Marie-Cécile Péra***

Coordinator

Ch.mo Prof. Vincenzo Sergi

DESCRIPTION DU SUJET

La recherche de nouvelles sources d'énergie pour faire face aux besoins croissants de l'humanité est actuellement un sujet d'intérêt en vogue. De plus en plus, l'hydrogène joue un rôle important dans le domaine de la conversion de l'énergie. Dans ce contexte, les piles à combustible (PàC) connaissent un regain d'intérêt tant sur le plan industriel qu'en recherche, en raison de leur rendement élevé, de leur densité de puissance acceptable, de leur démarrage rapide et de leur bonne compatibilité avec l'environnement. Notamment, les piles à combustible (PàC) à membrane polymère (PEM) offrent des perspectives d'utilisation larges aussi bien dans le domaine des applications stationnaires que dans celui des transports. Il reste cependant des contraintes liées à leur durée de vie qui sont les principaux défis à relever pour leur commercialisation. De nombreuses recherches ont été faites afin de tester de nouveaux matériaux et de développer des algorithmes capables d'assurer une gestion correcte de ces systèmes. C'est ainsi qu'en 2010, le Département américain de l'Energie (DoE) fixe comme objectif 40000 heures de fonctionnement pour les applications stationnaires et 5000 heures pour le secteur des transports. Ces normes sont considérées comme une référence pour la recherche dans le domaine des piles à combustible.

Les systèmes PàC, de par leur technologie sont par essence des systèmes multi-physiques. Leurs performances sont fortement liées aux variations des paramètres de fonctionnement, en effet en cas de défaillance, plusieurs mécanismes de dégradation chimiques, mécaniques et thermiques peuvent avoir lieu au cœur de la pile. Par conséquent, une exposition à long terme à ces phénomènes entraîne la réduction de la durée de vie des PàC. Une bonne gestion du système est donc l'un des objectifs clé, indispensable pour en assurer les performances. En général dans les systèmes PàC en commerce, on effectue des mesures sur les variables de fonctionnement, telles que la tension, le courant et la température de la pile afin de les contrôler. Toutefois, les stratégies de contrôle habituelles sont uniquement finalisées à garantir le fonctionnement du système dans des conditions acceptables. Il s'agit donc de développer de nouvelles stratégies d'identification des causes fontes des défaillances afin de pouvoir préciser les actions correctives à mener, soit la maintenance préventive.

C'est donc dans cette optique que ces activités de recherche ont été orientées vers le développement de nouveaux algorithmes de diagnostic capables de surveiller le fonctionnement de la PàC en assurant un contrôle correct du système. L'outil de diagnostic doit donc identifier et isoler un ou

plusieurs phénomènes provoquant le dysfonctionnement du système. Dans ce scénario, la capacité à identifier en temps réel l'état de santé du système et les mécanismes de défaillance devient l'un des principaux objectifs pour atteindre une durée de vie plus longue.

Le présent travail vise à développer un algorithme d'identification en ligne des paramètres d'un circuit électrique équivalent (CEE) pour la caractérisation de l'impédance de la pile PEM, ayant pour but le développement d'une stratégie de diagnostic embarqué. La méthode développée se base sur la spectroscopie d'impédance électrochimique (SIE). La SIE est une technique expérimentale non destructive, généralement appliquée pour l'analyse des systèmes électrochimiques. Cette procédure stimule les principaux phénomènes physiques impliqués dans le système PEM. Son utilisation est basée sur l'injection d'un signal sinusoïdal, qui perturbe le système à des fréquences connues. A partir des résultats obtenus, il est possible de dissocier les différents procédés électrochimiques et d'en isoler les différentes pertes (ohmique, d'activation et de diffusion). L'exploitation des informations apportées par la SIE, advient grâce au circuit électrique équivalent (CEE). En effet, ce procédé permet de distinguer et analyser les différents phénomènes électrochimiques qui se produisent au cœur de la pile parmi les composants électriques du CEE. Pour chaque élément électrique un ou plusieurs paramètres sont identifiés; en analysant leur valeur, il est donc possible de surveiller le fonctionnement du système. La méthode de diagnostic présentée, se base sur une comparaison des valeurs entre les paramètres identifiés en ligne et ceux prévus en cas de non dysfonctionnement du système.

Ce travail analyse deux aspects fondamentaux: la mise en œuvre de la SIE sur des systèmes intégrés et l'identification des paramètres du modèle en ligne. Le premier cas est lié à la réalisation et à la fiabilité des mesures d'impédance. A cet effet, les activités expérimentales ont permis d'évaluer l'influence des facteurs internes et externes à la pile sur les mesures effectuées directement sur un système intégré plutôt que sur une pile montée sur un banc d'essai.

Quant au second, le but est de résoudre les problèmes liés à la minimisation d'une fonction complexe et non-linéaire, qui varie selon les conditions opératives de la pile. En particulier, l'influence de plusieurs variables dans la fonction de minimisation a été analysée en soulignant le problème des conditions initiales des paramètres.

Cette étude vise donc à remplacer l'interprétation des spectres d'impédance, communément réalisée hors ligne et basée sur l'expertise humaine, par une procédure automatique. La procédure proposée effectue la sélection automatique de la configuration du modèle CEE et des valeurs des paramètres de départ appropriés pour la minimisation; enfin, l'identification des paramètres a lieu après avoir

effectué l'algorithme de préréglage. Successivement, nous avons développé des modèles de régression pour estimer les paramètres en condition normale de la PàC. Ces résultats sont donc comparés aux valeurs des paramètres identifiées en ligne, pour établir le diagnostic de la pile.

La méthode de diagnostic adoptée prévoit en premier lieu la surveillance du fonctionnement de la pile; et successivement la procédure d'identification en ligne. Pour observer le système, un modèle CEE simule le spectre d'impédance en utilisant les paramètres de référence obtenus avec les régressions. Par la suite, les spectres d'impédance simulés et mesurés sont comparés pour estimer la déformation du spectre réel par rapport au spectre attendu. Au cas où le résidu est inférieur au seuil fixé a priori, le système fonctionne en condition normale, en cas contraire la procédure d'identification en ligne démarre. La détection des défaillances et leur isolement sont réalisés suite à la comparaison des valeurs des paramètres identifiés à celles prévues en cas de condition normale du système. Il est possible de détecter un dysfonctionnement lorsqu'un ou plusieurs résidus se situent au-dessus des seuils fixés. A ce sujet, la détection des conditions de dysfonctionnement, en cas d'assèchement et de début de noyage, a été proposée.

Ces travaux s'inscrivent dans le projet D-CODE (DC/DC COnverter-based Diagnostics for PEM systems, <https://dcode.eifer.uni-karlsruhe.de>) financé par la Communauté Européenne (Seventh Framework Programme - FP7/2007-2013 for the Fuel Cells and Hydrogen Joint Technology Initiative, under grant agreement n° 256673). L'objectif de cette thèse a été de mettre en œuvre un outil de diagnostic embarqué pour des PàC de type PEM basé sur la SIE. Dans ce contexte, nous nous sommes intéressés principalement à la fiabilité des mesures et l'exploitation des spectres d'impédance.