

# Sujet de Thèse : Etudes prédictives des processus de vieillissement des piles à combustible à membrane d'échange de protons

## Encadrement

**Directeur de thèse :** Fabrice Gamboa <sup>1</sup>, Christophe Turpin <sup>2</sup>.

**Encadrants industriels :** Ludovic Landry <sup>2</sup>, Lucian Alecu <sup>3</sup>.

**Co-encadrants universitaires :**

<sup>1</sup>. Université Toulouse 3 - Institut de Mathématiques de Toulouse (*IMT*)

<sup>2</sup>. INP Toulouse - Laboratoire Laplace

<sup>3</sup>. Vitesco Technologies France - Technologies and Innovation department (*TI*)

<sup>4</sup>. Continental Automotive France - Continental Digital Services France (*CDSF*)

## Mot clés

Mathématiques appliquées, Apprentissage automatique, Sciences et technologies du numérique et de l'information, Apprentissage par renforcement, Machine Learning, Pile à Combustible, Vieillissement.

## Contexte et enjeux industriels

De manière à satisfaire à des exigences de plus en plus strictes en termes d'émissions CO<sub>2</sub>, Vitesco Technologies considère que la pile à combustible est une technologie prometteuse pour la décarbonisation des véhicules commerciaux utilitaires, bus et poids lourds à court et moyen terme et des véhicules particuliers à plus long terme.

Actuellement les bus des transports publics sont l'une des applications des systèmes piles à combustible les plus largement adoptées. Cela est dû au fait que la plupart d'entre eux sont exploités par le secteur public, ainsi qu'à des modèles d'exploitation planifiés et prévisibles <sup>[1]</sup>. Les bus ont généralement des itinéraires réguliers, ce qui nécessite peu de stations de ravitaillement. En outre, les exploitants d'autobus sont fortement influencés par les mesures prises par les autorités publiques, ce qui en fait un choix adapté pour une application précoce de la technologie des piles à combustible. Des activités entourent le déploiement de camions légers et moyens dans les principaux marchés étudiés (*Chine, Europe & Etats-Unis*), ce qui offre une comparaison intéressante avec les autobus car la plupart de ces déploiements sont exploités par le secteur privé bien qu'avec l'appui des gouvernements <sup>[2]</sup>. Le transport de marchandises, qui représente une grande partie du flux de trafic total dans les zones urbaines (*de 8 à 15 % en Europe*), fait de la technologie piles à combustible un moyen très prometteur pour réduire les émissions polluantes et sonores dans les zones urbaines <sup>[3]</sup>. Dans un avenir proche on peut donc s'attendre à ce que l'application des camions légers et moyens équipés des systèmes piles à combustible continue de croître dans la logistique urbaine et interurbaine. Le développement sur des poids lourds est relativement en retard par rapport aux autres applications de la logistique. La plupart des grands équipementiers en sont au stade de la R&D, et seuls quelques produits ont été lancés ou sont en cours d'essai <sup>[4]</sup>. Le développement relativement lent des applications poids lourds peut être attribué à la combinaison du coût élevé du véhicule, du coût élevé de l'hydrogène (*pour*

*transporter des charges lourdes sur de longues distances*) et de l'infrastructure de ravitaillement limitée <sup>[5,6]</sup>. La technologie des systèmes piles à combustible devient de plus en plus mature et optimisée pour les applications lourdes en offrant une autonomie et un temps de ravitaillement proches de ceux des véhicules classiques et en bénéficiant d'émissions nulles <sup>[7]</sup>. Les poids lourds ont donc un grand potentiel pour remplacer à moyen terme les poids lourds diesel et électriques à batterie.

La première voiture de tourisme équipée d'un système pile à combustible produite commercialement sur une chaîne de montage remonte à la Toyota Mirai en 2014 <sup>[8]</sup>. Cependant son déploiement s'est limité à des centaines ou des milliers d'unités par an aux États-Unis, en Europe et au Japon : entre 2017 et 2018, 292 et 3538 ont été vendues en Europe et aux États-Unis <sup>[3]</sup>. Ces véhicules de tourisme offrent une solution zéro émission avec une facilité d'utilisation similaire à celle des véhicules conventionnels : besoin que de 3 à 5 minutes pour faire le plein et parcourir de 400 à 550 kilomètres, ce qui est comparable aux véhicules à moteur à combustion interne <sup>[9]</sup>. Les premiers utilisateurs sont principalement des sociétés de crédit-bail, des exploitants de parcs automobiles <sup>[10]</sup>, des entreprises, des agences gouvernementales mais les particuliers sont encore peu nombreux en raison de l'absence d'infrastructures d'hydrogène généralisées.

Malgré des temps de ravitaillement en hydrogène plus rapides que les véhicules électriques à batterie, une autonomie importante, l'absence d'émissions polluantes localement et le recyclage à près de 100 % des technologies hydrogène, l'adoption généralisée des véhicules équipés d'un système pile à combustible se heurte à des difficultés. Premièrement, le **coût de ces véhicules** et le **prix de l'hydrogène** restent élevés par rapport aux véhicules conventionnels et aux combustibles fossiles <sup>[11]</sup>. Des études montrent qu'en 2019 les véhicules équipés d'un système pile à combustible sont environ 40 % plus chers que les véhicules électriques à batterie et environ 90 % plus chers que les véhicules conventionnels sur une base de 100 km <sup>[3]</sup>. La façon de produire l'hydrogène est l'élément déterminant pour obtenir un carburant décarboné et compétitif : l'hydrogène gris (*issu des énergies fossiles*) revient à environ 1.5 euro par kilogramme en Europe quand l'hydrogène vert (*issu d'électricité bas carbone, renouvelable*) revient à environ 5.0 à 6.0 euro par kilogramme. Deuxièmement, même si la technologie devient de plus en plus mature et optimisée pour les différentes applications, la **durabilité des systèmes pile à combustible** est le principal verrou technologique par rapport à la durée de vie de moteurs à combustion interne. Aujourd'hui la durée de vie d'un système pile à combustible est estimée entre 10.000 et 20.000 heures selon la technologie de la pile à combustible (*plaques bipolaires en métallique ou en graphite composite*) mais elle devrait s'améliorer de manière significative dans un avenir proche. La durée de vie pour les véhicules de tourisme à moteur à combustion est d'environ 8.000 heures et d'environ 40.000 heures pour les applications poids lourds. En comparaison, la technologie à batterie présente aujourd'hui trois inconvénients importants dans les applications longue distance que sont : leur autonomie qui reste limitée et dépend grandement des conditions de circulation et des éléments extérieurs (*température, type de route*), la réduction de la charge utile du fait de l'augmentation du poids des véhicules et l'augmentation des temps d'arrêt du fait des temps de charge batterie. Ainsi, compte tenu des avantages potentiels relatifs à la technologie des systèmes piles à combustible (*densité d'énergie stockée, utilisation et ravitaillement*), les premières applications grandes échelles devraient être les véhicules utilitaires, les autobus et les poids lourds <sup>[12]</sup>.

Il est également intéressant de souligner que même si les avantages qualitatifs des systèmes pile à combustible ne sont pas pris en compte, des analyses du TCO (*Total Cost Ownership*) montrent des résultats cohérents et très encourageants <sup>[3]</sup>. Les véhicules équipés d'un système pile à combustible devraient devenir moins cher d'un point de vue du coût TCO au cours des dix prochaines années sur l'ensemble des applications. Cette situation peut s'expliquer par la baisse des coûts de construction

des véhicules à mesure que la technologie évolue, les économies d'échelle qui s'améliorent, ainsi que par d'autres facteurs tels que le coût de l'hydrogène, les infrastructures, etc. Les composants auxiliaires (*hors système de stockage*) et l'électronique de contrôle associée représentant près de 45 % du coût total d'un système pile à combustible, Vitesco Technologies travaille actuellement sur une approche modulaire permettant de couvrir les puissances demandées par les véhicules commerciaux et les véhicules de tourisme en assemblant un ou plusieurs modules élémentaires de piles à combustible. Cette approche modulaire doit permettre une réduction des coûts grâce à des volumes de production plus importants et une augmentation de la durabilité des systèmes piles à combustible par un meilleur contrôle du partage de puissance et ainsi accroître l'attractivité de cette technologie dans le transport terrestre même si la production d'hydrogène et le développement des infrastructures restent toutefois des enjeux politiques majeurs. Il est à noter que cette approche modulaire a été utilisée dernièrement par Hyundai dans la construction de son premier camion hydrogène XCient Fuel Cell de 180 kW puisque deux modules élémentaires de 95kW ont été associés (*identique à celui de la Hyundai NEXO*).

En conclusion, les obstacles liés à la durabilité du système pile à combustible restent une préoccupation majeure pour une adoption à grande échelle de cette technologie. La dégradation des performances dépendant principalement des défaillances rencontrées lors de l'utilisation du système pile à combustible, des mécanismes d'identification des facteurs de vieillissement, de diagnostic des défaillances et/ou de prédiction du vieillissement doivent être intégrés aux stratégies de contrôle.

## **Contexte scientifique, technique et industriel**

Vitesco Technologies est intéressée d'abord par une démarche de recherche appliquée permettant d'améliorer les lois de commande optimales existantes dans son portefeuille de produits. A ce jour, ces lois de commande sont essentiellement constituées d'approches à base de règle ("*rule-based*") sur les véhicules de série, et à base de commande optimale avancée (*Dynamic Programming, Principe du Maximum de Pontryagin*) sur des véhicules de démonstration mais aucune de ces lois ne prend en compte le vieillissement du système.

Plusieurs méthodes de modélisation de la dégradation des performances d'une pile à combustible sont disponibles dans la littérature. Ces méthodes peuvent être classées selon trois catégories : les méthodes basées sur des modèles, les méthodes basées sur des données et les méthodes hybrides [13,14,15]. Les méthodes basées sur des modèles [16,17,18] sont basées sur des modèles analytiques pour reproduire le comportement dynamique du système étudié en fonction des mécanismes de dégradation. Le principal avantage de ces méthodes basées sur des modèles est qu'elles ne nécessitent pas une grande quantité de données. Pour un système complexe dont les mécanismes de dégradation sont influencés par de nombreux facteurs, la déduction d'un modèle analytique peut être très difficile. Ces méthodes sont donc plutôt dédiées aux systèmes simples dont les lois physiques et les mécanismes de dégradation sont bien compris [19]. Les méthodes basées sur les données [20,21] sont considérées comme des approches de type boîte noire pour réaliser une prédiction. Elles ne nécessitent pas de connaissance du système ni de lois physiques pour établir une prédiction. Les données mesurées et les données historiques sont utilisées pour apprendre le comportement dynamique du système. Par conséquent, les méthodes de prédiction supervisée par les données sont particulièrement pertinentes pour les systèmes complexes dont les lois de dégradation ne sont pas bien comprises. Il est intéressant de souligner qu'une approche empirique [22,23] propose la recombinaison du taux de dégradation de la tension de la pile à combustible en fonction de son utilisation. En fonction des modes de fonctionnement considérés (*i.e. arrêt/démarrage, charge importante, charge fluctuante, etc.*), les auteurs estiment les taux de dégradations associés en réalisant des campagnes d'endurance dédiées à chaque mode de fonctionnement. Un taux de dégradation global est ainsi extrait par recombinaison

linéaire des taux sous une hypothèse de linéarité. Le point fort de cette approche est la mesure explicite et directe de la sensibilité du vieillissement au mode de fonctionnement via une campagne d'endurance spécifique pour chacun des modes. Malgré tout, l'aspect temporel est réduit à l'emploi de taux de dégradations fixes et l'hypothèse de linéarité néglige les potentiels couplages issus du mélange des différents stress. Les approches hybrides <sup>[24,25]</sup> combinent les approches basées sur les données et les approches basées sur les modèles, en cumulant les avantages des deux approches. Toutefois, les méthodes hybrides sont difficiles à développer. En effet, la combinaison d'approches basées sur les données et d'approches basées sur les modèles permet de cumuler les avantages des deux approches mais les inconvénients sont également cumulés. Ainsi, ces méthodes nécessitent une grande quantité de données et une bonne compréhension des lois physiques.

## Axes de recherche

L'objectif de cette thèse est de proposer et de concevoir des méthodes d'apprentissage machine se basant sur des approches éprouvées intégrant des connaissances issues des modèles physiques aux procédures d'identification pour prédire la durée de vie et/ou les performances futures d'une pile à combustible. L'idée est de faire usage à la fois des lois physiques qui régissent la dynamique de ces systèmes et de modèles de prédiction statistique quasi-interprétables, tout en améliorant l'évolutivité et les performances de ceux-ci. L'accès à une grande quantité de données étant identifié comme potentiellement critique pour cette approche, une partie de la thèse sera dédiée aux méthodes d'échantillonnage améliorées de type Active Learning ou à des méthodes de génération de données. L'application de l'approche réside dans la prédiction de la dégradation des performances d'une pile à combustible dans des conditions de fonctionnement représentatives de la mobilité terrestre : poids lourds, bus, véhicules utilitaires légers et véhicules particuliers.

## Environnement et ressources

Ce travail de thèse est porté par **VITESCO TECHNOLOGIES France** et deux partenaires académiques clés dans le domaine statistique et probabilités et des piles à combustible :

- **L'Institut de Mathématiques de Toulouse (IMT)** via la chaire ANITI : "*AI for physical models with geometric tools*" portée par Fabrice Gamboa. Fabrice Gamboa est professeur à l'IMT et membre de l'équipe de Statistique et Optimisation. Fondateur du groupement de recherche GDR CNRS MASCOT NUM, ses travaux de recherche portent sur les méthodes statistiques pour la compréhension et la modélisation des phénomènes physiques par des codes de calcul.

- Le **laboratoire LAPLACE** : acteur académique avec plus de 20 ans d'expérience dans la recherche dans la modélisation et la caractérisation des performances et du vieillissement des piles à combustible de type PEM basse température via la plateforme Hydrogène.

Au niveau application, le doctorant bénéficiera d'un environnement très favorable, avec l'accès à des clusters de cartes graphiques haute performance, adaptés aux réseaux de neurones profonds : les plateformes Osirim à l'IRIT et Calmip, le méso-centre de calcul de la région Occitanie.

## Plan prévisionnel

### Phase 1 (0 - 3 mois) : Etude bibliographique

La première phase consistera en une étude bibliographique de manière à :

- **Faire un état de l'art** exhaustif des approches de modélisation de la dégradation des performances dans des domaines industriels similaires (*ex : batteries haute tension*).

- **Identifier des principaux facteurs contribuant au vieillissement** d'une pile à combustible (PàC) dans des conditions de fonctionnement représentatives de la mobilité terrestre : véhicules utilitaires, bus, poids lourds et véhicules particuliers. En s'appuyant sur des études similaires qui indiquent certains de ces facteurs dans des conditions restreintes <sup>[26], [27]</sup>, mais aussi sur de nouvelles expériences de roulage en condition réelles, le projet doit mettre en évidence ces facteurs et estimer de manière quantitative l'impact de chacun. Il est bien établi <sup>[28]</sup> que certaines dégradations des piles à combustible sont réversibles alors que d'autres sont irréversibles, et qu'elles interviennent à plusieurs échelles de temps <sup>[29]</sup>. Il est donc nécessaire de distinguer les facteurs pertinents dans le processus de vieillissement d'une PàC dans les conditions de fonctionnement représentatives de la mobilité terrestre.

*Localisation du doctorant : 00% côté industriel et 100% côté académique*

### Phase 2 (4 - 9 mois) : Définition du problème

La deuxième phase sera consacrée à :

- A la **définition** de l'instrumentation (*variables indépendantes, valeurs admissibles et contraintes physiques*) et à la **préconisation** du type de mesures et des profils électriques de sollicitation des PàC en vue de la réalisation des campagnes de vieillissement au sein du laboratoire LAPLACE. Un accent particulier sera mis sur la qualité et la reproductibilité des expériences, afin de garantir la pertinence des analyses statistiques ultérieures.

- Aux **analyses quantitatives** avec des méthodes statistiques appropriées, de manière à mettre en évidence les facteurs principaux contribuant au vieillissement de PàC dans des conditions de fonctionnement représentatives de la mobilité terrestre. La détermination de ces facteurs sera effectuée en développant des techniques élaborées d'analyse de sensibilité spécifiques à des courbes de vieillissement. En particulier, des contraintes physiques sur les courbes pourront être introduites de façon géométrique en considérant des espaces *ad hoc*. L'analyse de sensibilité pourra alors être développée par l'utilisation d'outils mathématiques sophistiqués <sup>[32, 33]</sup>.

*Localisation du doctorant : 60% côté industriel et 40% côté académique*

### Phase 3 (10 - 24 mois) : Méthodologie hybride

La troisième phase visera à développer une **méthodologie hybride** intégrant à la fois une modélisation physique et une approche empirique statistique (*basée sur des mesures réalisées au sein du laboratoire, des analyses statistiques associées et/ou des a priori métier*) pour approximer la dégradation des performances et la durée de vie des PàC dans les régimes étudiés. La complexité des phénomènes et la multitude des facteurs contribuant au vieillissement rendent difficile une modélisation mécanistique seule. Pour pallier cette problématique, des approches récentes <sup>[30]</sup>, <sup>[31]</sup> s'intéressent à l'apport des approches empiriques, dites guidées par de la donnée, qui ont été utilisées avec beaucoup de succès dans d'autres domaines. Au terme de cette phase, une rédaction d'un article scientifique avec une possible participation à un congrès international est à prévoir.

*Localisation du doctorant : 60% côté industriel et 40% côté académique*

### Phase 4 (25 - 30 mois) : Interprétabilité et robustesse des modèles

La quatrième phase sera consacrée à la capacité des modèles proposés d'être interprétables, robustes et génériques par rapport à la diversité de profils électriques de sollicitation des PàC.

A ce titre, des analyses de sensibilité mais aussi des mesures d'incertitude appropriées devront être conduites. Elles prolongeront l'étude effectuée pour la réduction de dimension réalisée précédemment. A cette étape, il sera nécessaire de justifier les indicateurs et les métriques à prendre en compte pour évaluer de manière pertinente les performances des modèles prédictifs <sup>[29]</sup>. Le candidat identifiera aussi des voies d'amélioration et cherchera à élargir le champ d'application des méthodes développées. Au terme de cette phase, une rédaction d'un article scientifique avec une possible participation à un congrès international est à prévoir.

*Localisation du doctorant : 80% côté industriel et 20% côté académique*

**Phase 6 (31 - 36 mois) :** Finalisation du travail de thèse

La dernière phase consistera à rédiger le mémoire et à préparer la soutenance.

*Localisation du doctorant : 00% côté industriel et 100% côté académique*

## Références

- [01] - IEA-RETD, Non-individual transport – Paving the way for renewable power-to-gas (RE-P2G). Available from: <http://iea-retd.org/wp-content/uploads/2016/07/201607-IEA-RETD-RE-P2G-final-report.pdf>
- [02] - The Business Case for Fuel Cells: Delivering Sustainable Value (130)
- [03] - Fueling the Future of Mobility: Hydrogen and fuel cell solution for transportation, Vol1.
- [04] - H2-share, Project archive. Available from: <https://fuelcelltrucks.eu/project/>
- [05] - Jon Leonard, Hydrogen Fuel Cell Future Is Promising for Heavy-Duty Trucks. Available from: <https://www.act-news.com/news/hydrogen-fuel-cell-vehicles/>
- [06] - Transitioning to Zero-emission heavy-duty freight vehicles
- [07] - Vishnu Rajamanickam, IAA 2018: Hyundai signs MoU for producing heavy-duty fuel cell electric trucks. Available from: <https://www.freightwaves.com/news/technology/hyundai-hydrogen-fuel-cell-iaa-2018>
- [08] - fuelcellworks, clevershuttle-and-toyota-achieve-1000000-kilometers-hydrogen-fuel-cell-milestone. Available from: <https://fuelcellworks.com/news/clevershuttle-and-toyota-achieve-1000000-kilometers-hydrogen-fuel-cell-milestone/>
- [09] - HYUNDAI website, Fuel cell model. Available from: <https://www.hyundaiusa.com/tucsonfuelcell/index.aspx>
- [10] - Yoko Kubota, Toyota's Fuel-Cell Car Mirai Goes on Sale. Available from: <https://blogs.wsj.com/japanrealtime/2014/12/15/toyotas-fuel-cell-powered-mirai-hitsshowrooms/>
- [11] - Leslie Eudy and Matthew Post, Fuel Cell Buses in U.S. Transit Fleets: Current Status 2018
- [12] - FEV Webinars: FEV Future Truck Series June – July 2020. Available from <https://fev-live.com/webinars>
- [13] - Prognostics and health management of PEMFC - state of the art and remaining challenges. Int J Hydrogen Energy 2013;38:15307-17.
- [14] - A review on prognostics and health monitoring of proton exchange membrane fuel cell. Renew Sustain Energy Rev 2017;75:440-50.
- [15] - Estimating the end-of-life of PEM fuel cells: guidelines and metrics. Appl Energy 2016;177:87-97.
- [16] - Proton exchange membrane fuel cell behavioral model suitable for prognostics. Int J Hydrogen Energy 2015;40:8384-97.
- [18] - Extended Kalman filter for prognostic of proton exchange membrane fuel cell. Appl Energy 2016;164:220-7.
- [19] - An ensemble of models for integrating dependent sources of information for the prognosis of the remaining useful life of Proton Exchange Membrane Fuel Cells. Mech Syst Signal Process 2019;124:479-501.
- [20] - Data driven models for a PEM fuel cell stack performance prediction. Int J Hydrogen Energy 2013;38:11628-38.
- [21] - Etude de dégradations des performances de Piles à Combustible PEM BT alimentées en H2/O2 lors de campagnes d'endurance : du suivi de l'état de santé en opération à la modélisation du vieillissement, thèse de doctorat, Toulouse INP, 2018.
- [22] - A quick evaluating method for automotive fuel cell lifetime », IJHE 33, pp. 3829-3836, 2008.
- [23] - Modélisation des performances et du vieillissement des piles à combustible PEM basses températures en vue d'applications aéronautiques, thèse de doctorat, Toulouse INP, 2020.
- [24] - A hybrid remaining useful life prognostic method for proton exchange membrane fuel cell. Int J Hydrogen Energy 2018;43:12314-27
- [25] - Remaining useful life estimation for proton exchange membrane fuel cells using a hybrid method. Appl Energy 2019;237:910-9.

- [26] - Bharath, K. V. S. and Blaabjerg, Frede and Haque, Ahteshamul and Khan, Mohammed Ali. "Model-Based Data Driven Approach for Fault Identification in Proton Exchange Membrane Fuel Cell." *Energies*, 2020.
- [27] - Dong, Xinfeng Zhang and Daijun Yang and Minghui Luo and Zuomin. "Load profile based empirical model for the lifetime prediction of an automotive PEM fuel cell." *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017: 11868-11878.
- [28] - Zhang, Dacheng. "Contribution to prognostics of PEM fuel cells: approaches based on degradation information at multiple levels." thèse, 2018.
- [29] - Jouin, Marine and Bressel, Mathieu and Morando, Simon and Gouriveau, Rafael and Hissel, Daniel and P{\'e}ra, Marie and Zerhouni, Noureddine and Jemei, Samir and Hilairret, Mickaël and Bouamama, Belkacem. "Estimating the end-of-life of PEM fuel cells: Guidelines and metrics." *Applied Energy*, 2016: 87-97.
- [30] - Vichard, L. and Harel, F. and Ravey, A. and Venet, P. and Hissel, D. "Degradation prediction of PEM fuel cell based on artificial intelligence." *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020: 14953-14963.
- [31] - Lu, Yujie Cheng and Noureddine Zerhouni and Chen. "A hybrid remaining useful life prognostic method for proton exchange membrane fuel cell." *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018: 12314-12327.
- [32] - Fraiman, Ricardo, Fabrice Gamboa, and Leonardo Moreno. "Sensitivity indices for output on a Riemannian manifold." *International Journal for Uncertainty Quantification* 10.4 (2020).
- [33] - Gamboa, Fabrice, et al. "Global Sensitivity Analysis: a new generation of mighty estimators based on rank statistics." *arXiv preprint arXiv:2003.01772* (2020).