

Approche de développement Model Based Safety Analysis (MBSA) pour un système Hydrogène

Model Based Safety Analysis (MBSA) development approach for a hydrogen system

VAIDYA Sudnya
Seres Technologies
Coublevie

svaidya@seres-technologies.com

DESMOULINS Cyrille
Seres Technologies
Coublevie

cdesmoulin@seres-technologies.com

RULLIER Julien
Seres Technologies
Villeurbanne

jullier@seres-technologies.com

Résumé — Cet article explore la méthodologie MBSA (Model Based Safety Analysis) pour une conception sûre des systèmes à hydrogène embarqués pour les véhicules. Le développement MBSA est basé sur des modèles de circuits électriques équivalents avec des paramètres multi-physiques pour assurer la sécurité d'une pile à combustible à hydrogène dans son environnement. Cette approche établit un lien clair entre les paramètres du modèle et la caractérisation de la pile à combustible, validée par des données expérimentales pour différents états de vieillissement. En outre, la possibilité de coupler le modèle avec une analyse de fiabilité pour détecter les défauts pendant la durée de vie opérationnelle de la pile à combustible est discutée.

Mots-clefs — *fiabilité, durabilité, pile à combustible (PàC), pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC), analyse des modes de défaillance et de leurs effets et de leur criticité (AMDEC), analyse de la sécurité basée sur un modèle (MBSA), apprentissage automatique (ML), modèle en boucle (MIL), spectroscopie d'impédance chimique (SIE), éléments des phases constantes (EPC), modèle électrique équivalent (MEE)*

Abstract — This article explores the MBSA (Model Based Safety Analysis) methodology for designing safe on-board hydrogen systems for vehicles. The MBSA framework is based on electric equivalent circuit models with multi-physics parameters to ensure the safety of a hydrogen fuel cell with its environment. This approach establishes a clear link between the model's parameters and the fuel cell's characterization, validated with experimental data for different states of ageing. Furthermore, the potential for coupling the model with a reliability analysis to detect faults during the fuel cell's operational lifespan is discussed.

Keywords — *Reliability, Durability, Fuel Cell (FC), Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC), Failure Mode Effects and Criticality Analysis (FMECA), Model-Based Safety Analysis (MBSA), Machine Learning (ML), Model In the Loop (MIL), Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS), Constant Phase Element (CPE), Equivalent Circuit Model (ECM)*

I. CONTEXTE GENERAL

La part des énergies renouvelables dans le mix énergétique est en croissance constante. Ces énergies sont intermittentes pour un grand nombre d'entre elles. Afin de pallier cette intermittence, une des solutions est de stocker ces énergies sous forme de gaz, dont l'hydrogène. L'hydrogène devient alors un vecteur énergétique pouvant être utilisé pour des applications stationnaires et mobiles. Ce vecteur énergétique peut également contribuer à une distribution spatiale plus homogène des ressources énergétiques renouvelables. Nous nous intéresserons dans cet article aux applications mobiles utilisant de l'hydrogène, et plus particulièrement dans les systèmes piles à combustible de technologie PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell) pour les véhicules.

Le secteur automobile s'oriente vers une mobilité durable et l'Europe joue un rôle moteur en encourageant la production de véhicules électriques à pile à combustible (Fuel Cell Electric Vehicle : FCEV) via des politiques environnementales strictes. La France, à elle seule, propose un investissement de 700 millions d'euros par an pour soutenir ce secteur [1]. Ces véhicules, propulsés par l'hydrogène et ne rejetant que de la vapeur d'eau lors de leur utilisation, représentent une alternative attrayante aux moteurs à combustion internes traditionnels.

A. Architecture d'un véhicule FCEV

La chaîne de traction d'un FCEV diffère de celle d'un véhicule à combustion interne. En effet, dans le cas d'un FCEV, le couple mécanique nécessaire à la traction du véhicule est généré par un moteur électrique et non pas par le moteur à combustion interne. Afin de générer cette puissance électrique, la pile à combustible convertit l'hydrogène en électricité, ce qui permet de

40 générer la puissance nécessaire à la chaîne de traction du véhicule. Le schéma Fig. 1 permet de visualiser les principaux
41 composants d'un système pile à combustible (SPàC). La chaîne de traction est ainsi composée des réservoirs hydrogène, du
42 Système Pile à Combustible et de son convertisseur de puissance DC/DC, d'une batterie tampon pour lisser les pics de puissance
43 de la chaîne de traction, et enfin des auxiliaires du véhicule, dont une batterie auxiliaire.
44

45 Cependant, les performances du stack de la PEMFC se dégradent au fil du temps. Les dégradations sont en partie liées au
46 point de fonctionnement et d'autre part aux performances des systèmes auxiliaires du stack de la PEMFC. Entre autres
47 paramètres, la gestion thermique par le système de refroidissement et la compression de l'air peuvent impacter la durée de vie
48 de la pile. Les recherches actuelles se concentrent donc sur l'optimisation de ces auxiliaires afin d'améliorer la durabilité et les
49 performances globales des piles à combustible et donc des FCEV.
50

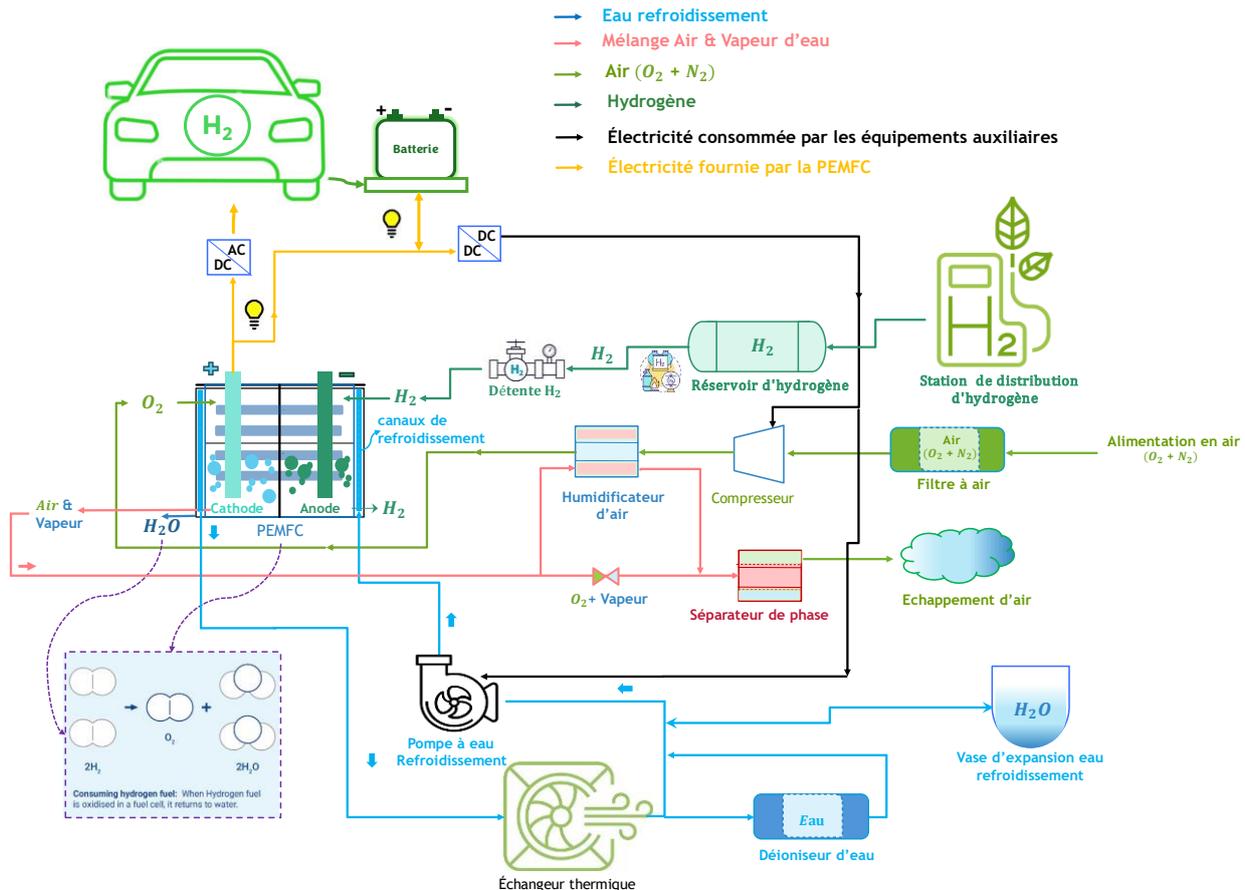


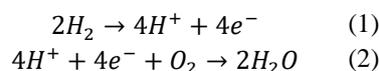
Fig. 1 : Schéma de l'architecture du système pile à combustible hydrogène.

51
52

53 Afin d'optimiser la durée de vie des systèmes et leur sûreté de fonctionnement, la méthode MBSA tend de plus en plus à
54 se déployer dans le secteur des transports routier.

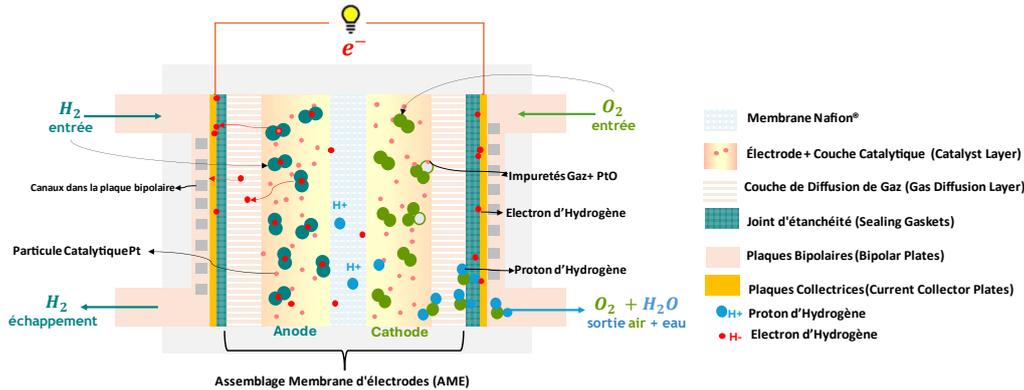
55 B. PEMFC Stack et Cellule

56 Pour commencer, il est important de rappeler qu'une PàC est un convertisseur électro-chimique, et non un générateur ou
57 une source d'énergie [2]. La PàC convertit l'énergie chimique interne de l'hydrogène en énergie électrique et thermique. Cette
58 conversion est réalisée grâce à une réaction dite électrochimique d'oxydoréduction montrée dans la Fig. 2. Cette réaction
59 consiste en l'oxydation d'un carburant d'une part à l'anode (1) et en la réduction d'un comburant d'autre part à la cathode (2).



60 Ces deux réactions sont favorisées par une couche de catalyseur, en général du platine. Les deux réactifs sont séparés par
61 une membrane à travers laquelle les ions produits par la réaction circulent. Les ions circulent de l'anode vers la cathode lorsqu'il
62 s'agit d'un électrolyte acide, et inversement avec un électrolyte alcalin. L'oxydation du carburant à l'anode produit des électrons

63 qui rejoignent le comburant situé à la cathode via un circuit électrique externe à la PàC, permettant la récupération de l'énergie
 64 convertie. L'électrolyte est pris en sandwich entre deux électrodes (anode et cathode) faites d'un matériau poreux i.e. Nafion®
 65 et conducteur par exemple un tissu de carbone, support du catalyseur, le tout étant lui-même entouré de deux plaques bipolaires
 66 en matériau conducteur, souvent du graphite ou des matériaux métalliques. Les plaques bipolaires servent aussi à acheminer
 67 les gaz réactifs : le carburant à l'anode, le plus souvent de l'hydrogène et le comburant à la cathode, de l'oxygène pur ou contenu
 68 dans l'air ambiant. Pour cela, des micro-canaux sont gravés dans les plaques, ou sont emboutis dans les plaques métalliques.
 69 Les gaz diffusent ensuite à travers le milieu poreux des électrodes avant d'atteindre le catalyseur puis l'électrolyte. L'empilement
 70 des composants nécessaires constituent l'Assemblage Membrane Electrode (AME), la mise en série d'une ou plusieurs AME
 71 constitue le stack de la pile à combustible. Les espèces chimiques produites lors de la réaction sont évacuées par les canaux de
 72 la plaque bipolaire à l'anode et à la cathode.



73

74 II. FIG. 2 : PILE A COMBUSTIBLE A MEMBRANE ECHANGEUSE DE PROTONS (PEMFC) ANALYSE DE LA DEGRADATION DE LA
 75 PEMFC

76 A. Etudes Dégradation de la PAC par AMDEC

77 L'analyse AMDEC (Analyse des Modes de Défaillance, de leurs Effets et de leur Criticité) ou FMECA (Failure Modes, Effects,
 78 and Criticality Analysis) est un outil essentiel pour garantir la fiabilité et la sécurité des véhicules électriques à pile à
 79 combustible (FCEV) [3,4]. Cette analyse permet d'identifier les défaillances potentielles pouvant survenir au niveau de la pile
 80 à combustible et de ses systèmes auxiliaires. Pour chaque défaillance identifiée, l'AMDEC dans la Fig. 3 évalue son effet sur
 81 les performances du FCEV (perte de puissance, arrêt du véhicule, etc.) ainsi que sa criticité en tenant compte de la sévérité du
 82 dysfonctionnement et de sa probabilité d'occurrence. En analysant les défaillances critiques, il est possible de mettre en place
 83 des actions correctives et préventives, dont le MBSA fait partie, afin de minimiser les risques et de maximiser la durée de vie
 84 de la PEMFC et son efficacité énergétique globale au sein du FCEV.

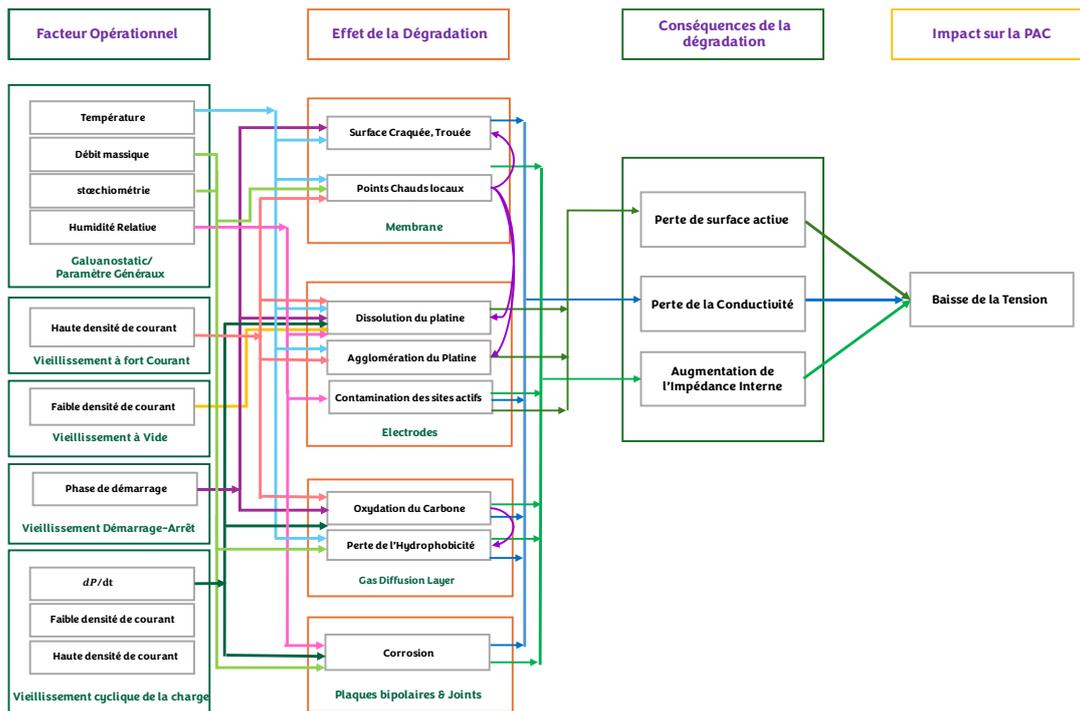


Fig. 3: Effets et Conséquences de la dégradation d'une cellule de la PAC.

85
86

87

88

89

90

91

92

93

94

95

96

- i) *Défaillance* : On appelle une défaillance chaque arrêt de l'aptitude d'un composant de la pile à accomplir une fonction requise. En général, la défaillance se définit comme étant le passage d'une entité d'un état de fonctionnement normal à un état de panne.
- ii) *Défaut* : Le défaut se définit par un écart par rapport au comportement attendu du système. Une investigation sur un défaut peut déboucher sur la constatation d'une défaillance ou d'une non-conformité dans le fonctionnement du système.
- iii) *Dégradation* : La dégradation englobe toute baisse de performance progressive. Elle est due généralement au vieillissement de la pile ou d'un des composants du système. Les mécanismes de dégradations regroupent l'ensemble des causes (contraintes externes, phénomènes précurseurs...) pouvant engendrer un défaut ou une défaillance.

La version simplifiée du tableau de l'AMDEC peut être consultée dans la [Tab.I](#).

97

TABLE I : AMDEC D'UNE CELLULE DE LA PAC.

Composants	Dégradations	Causes	Conséquences	Gravité
Membrane Nafion®	a) Noyage b) Assèchement c) Perforations, Craquelure d) Sous-Alimentation H ₂ e) Sous-Alimentation O ₂ f) Empoisonnement	i) Gestion : Humidité relative. (a, b) ii) Débit massique, Stœchiométrie (d, e) iii) Compression, Vibrations (c) iv) Polluants (f)	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Moins de surface active ▪ Perte de la perméabilité et diffusibilité 	Réversible : (a, b, d, e) Irréversible : (c, f)
Couche Catalytique Carbone + Platine (Pt)	a) Dissolution du Platine b) Agglomération du Platine	i) Gestion : Humidité relative. (a, b) ii) Démarrage – Arrêt Cyclage (a, b) iii) Polluants (a, b)	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Augmentation de la Résistance électrique 	Irréversible : (a, b)
Couche de Diffusion des Gaz Carbone+ PTFE	a) Rupture de la structure Carbone, Craquelure b) Erosion, Obstruction des Pores	i) Mauvaise gestion : Humidité relative, débit massique, Stœchiométrie. (b) ii) Compression, Vibrations (a) iii) Givre et glace (démarrage à froid) (a, b) iv) Démarrage – Arrêt Cyclage (b)	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Moins de Rigidité Mécanique ▪ Accumulation d'eau liquide 	Irréversible : (a, b)
Plaques Bipolaire Alliages Métalliques	a) Obstruction des Canaux b) Corrosion	i) Mauvaise gestion : Humidité relative, débit massique, Stœchiométrie.	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Accumulation d'eau liquide 	Réversible (a) Irréversible (b)
Joints d'étanchéité Polymère, Viton®	a) Perforations, Craquelure, Rupture b) Fondu, déformations thermiques et mécaniques	i) Mauvaise gestion : débit massique, température, pression. (b) ii) Compression, Vibrations (a, b)	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Perte d'étanchéité ▪ Fuites des gaz réactifs 	Irréversible : (a, b)

98

99 La liste des défaillances présentées dans ce tableau n'est pas exhaustive. Elles ont été sélectionnées du fait de leur occurrence
100 d'apparition, de leurs potentielles conséquences et de la détectabilité via l'écart à la courbe de polarisation et via la spectroscopie
101 d'impédance électrochimique.
102

103 *B. Méthode existante de détection des défauts et des défaillances*

104 Les capteurs installés sur un système pile à combustible fournissent des informations précieuses pour le pilotage
105 fonctionnel et le diagnostic de défauts [5]. Les capteurs les plus usuels sont les capteurs de tension (stack et cellules), courant
106 stack, la pression d'entrée et de sortie des lignes anodique et cathodique, l'hygrométrie de la ligne cathodique et la température
107 de la pile. La tension du stack étant l'image des performances, tout défaut se traduit par une variation de la tension. La mesure
108 de la tension du stack seul est souvent insuffisante. En effet, les piles à combustible sont composées de plusieurs dizaines, voire
109 centaines, de cellules en série pour fournir la tension et la puissance nécessaire. Avec un nombre important de cellules, le bruit
110 de la mesure de la tension du stack est souvent trop important pour détecter un défaut isolé dans une cellule [5]. Par conséquent,
111 la mesure de la tension des cellules individuelles ou par blocs de plusieurs cellules permet une meilleure localisation des défauts
112 au sein du stack de la pile.
113

114 Les techniques de diagnostic des PEMFC peuvent être classées en trois catégories en fonction de leurs dépendances au
115 modèle physique : boîte blanche, boîte grise et boîte noire. Les modèles en boîte blanche, basés sur des équations physiques
116 détaillées, sont utiles pour la compréhension du système, la surveillance hors ligne et la réalisation de simulateurs. Les modèles
117 en boîte grise intègrent des connaissances physiques et des approches basées sur les données. Ils remplacent les équations
118 différentielles complexes par des formules empiriques ou des structures d'intelligence artificielle, ce qui les rend adaptés au
119 diagnostic continu des PEMFC. Enfin, les modèles en boîte noire, purement basés sur les données et l'intelligence artificielle,
120 apprennent à partir des mesures du système pour identifier les pannes sans connaissances préalables du fonctionnement interne.

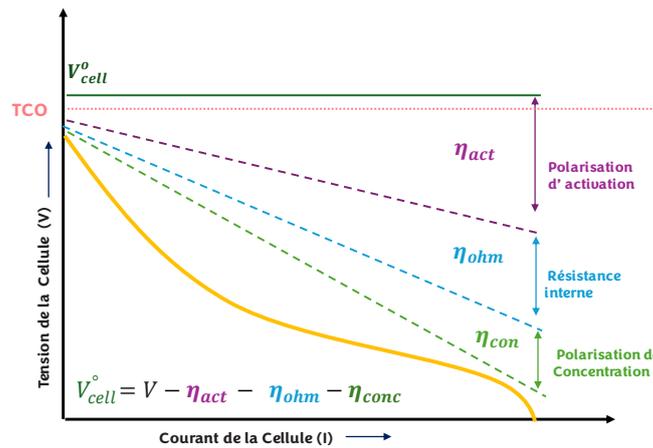


Fig. 4 : Courbe de polarisation d'une cellule d'une PàC.

123 *C. Courbe de Polarisation*

124 La courbe de polarisation en Fig. 4 est une représentation essentielle pour caractériser les performances d'un système
125 électrochimique comme une pile à combustible. Théoriquement, la tension d'une cellule électrochimique est définie par
126 l'équation de Nernst (3). Cette équation relie la tension de la cellule (V_{cell}) à son potentiel standard (V°), à la température (T),
127 au nombre d'électrons transférés (n), à la constante de Faraday (F) et aux concentrations des espèces réactives ($C_{oxydation}$:
128 H_2 , $C_{réduction}$: O_2).

$$V_{cell} = V^\circ \frac{R_g \cdot T}{n \cdot F} \cdot \ln \left(\frac{C_{oxydation}}{C_{réduction}} \right) \quad (3)$$

129 La courbe de polarisation représente l'évolution de la tension en fonction du courant ou de la densité de courant prélevé
130 sur le stack ou une cellule. Cette courbe permet de représenter l'impact des différentes pertes (activation(4) , ohmiques (6) ,
131 diffusion (5),) sur les performances. En plus de son utilité pour la caractérisation statique, la courbe de polarisation peut être
132 utilisée pour étudier l'effet des conditions opératoires sur les performances du système, et inversement, l'influence des
133 paramètres intrinsèques de la pile (température, pression, humidité relative, débit) sur son comportement. Le suivi dynamique
134 du positionnement par rapport à la courbe de polarisation permet de fournir des informations clés en temps réel sur le

135 comportement du système. Cette courbe est donc l'indicateur de performance le plus utilisé en raison de sa simplicité et de sa
136 fiabilité.

$$\Delta V_{act} = \frac{R_g \cdot T}{\alpha \cdot F} \ln \left(\frac{i}{i_0} \right) \quad (4)$$

$$\Delta V_{ohm} = i \cdot R_{ohmique} \quad (5)$$

$$\Delta V_{con} = \frac{R_g \cdot T}{n \cdot F} \ln \left(\frac{i_L}{i_L - i} \right) \quad (6)$$

$$V_{cellréel} = V_{cell} - \Delta V_{act} - \Delta V_{ohm} - \Delta V_{con} \quad (7)$$

137

138 III. APPROCHE DE DEVELOPPEMENT MODEL BASED SAFETY ANALYSIS (MBSA) DE LA PEMFC.

139 Les approches MBSA détaillées en Fig. 5 démontrent leur intérêt pour le diagnostic embarqué des PEMFC. L'association
140 de différents modèles, notamment un modèle multiphysique-dynamique du système composé de macros et micros modèles et
141 des compléments, permet de converger vers un "jumeau numérique" [6]. Ce jumeau numérique, matérialisé par une maquette
142 virtuelle simulant l'ensemble du cycle de vie de la pile, permet de maîtriser différents aspects de ses performances et de ses
143 dysfonctionnements. Il virtualise en effet les comportements et interactions avec l'environnement extérieur, facilitant
144 l'évaluation de la continuité de service, de la fiabilité intrinsèque, de la sécurité et des performances fonctionnelles et
145 environnementales. Ces éléments, en extension constante, forment le tableau de bord des métriques utilisés pour le diagnostic.
146 Plus encore, le jumeau numérique fournit des informations précieuses sur la distribution des courants et des potentiels dans la
147 membrane, l'état de santé des composants internes, l'efficacité de la réaction électrochimique et les contraintes mécaniques
148 subies. Ces informations complémentaires permettent ainsi une bonne compréhension du fonctionnement de la pile et un
149 diagnostic plus précis des éventuelles anomalies rencontrées.

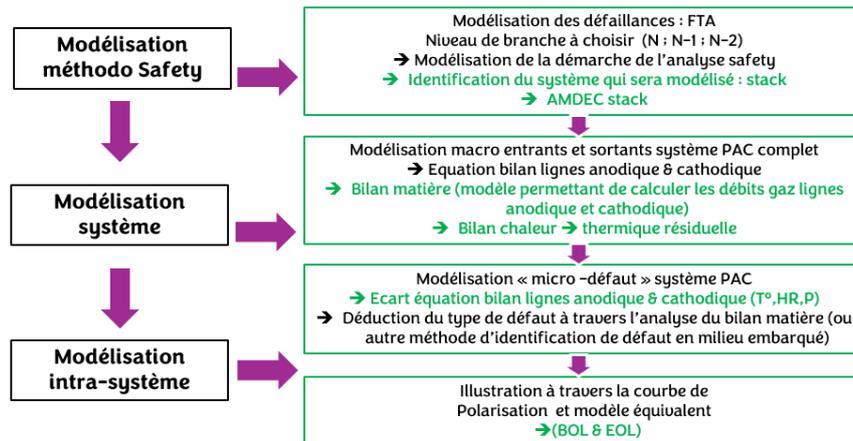


Fig. 5 : Principe de la méthodologie MBSA.

150
151

152 Afin d'étudier de façon optimale les systèmes, il est nécessaire de les décomposer en fonctions de base afin de limiter la
153 complexité de modélisation. Une fois ces fonctions identifiées, il est possible de les appeler et de les associer dans d'autres
154 fonctions permettant d'atteindre *in fine* la modélisation d'un système complexe. Par extension, il est possible de modéliser les
155 phénomènes de pannes ou de défaillances.

156

157 Les modèles physiques des composants peuvent être développés suivant un certain nombre d'étapes :

- 158 1. Identification de l'objectif principal de la modélisation
- 159 2. Caractérisation du système matériel étudié : comportement mécanique, thermodynamique, électrique, cinétique,
160 électrochimique etc.
- 161 3. Identification des principaux phénomènes et des phénomènes limitants à partir de données connues ou d'expériences
162 déterminées
- 163 4. Sélection d'une base théorique à partir des différentes théories possibles : énoncé des hypothèses du modèle
- 164 5. Formulation des équations
- 165 6. Analyse des degrés de liberté
- 166 7. Choix d'une méthode numérique de résolution

- 167 8. Estimation des paramètres
- 168 9. Validation du modèle sur données réelles (Software in the Loop : SIL)
- 169 10. Documentation du modèle (10bis. Recalage du modèle)
- 170 11. Intégration du modèle dans un environnement de simulation (Model in the Loop : MIL)
- 171 12. Validation des ressources nécessaires pour l'exploitation du modèle en environnement embarqué (hardware et
- 172 software)
- 173 13. Qualification du modèle dans l'environnement embarqué (Hardware in the Loop : HIL)
- 174 14. Développements ultérieurs du modèle suivant l'avancement du projet : améliorations, évolutions.

175
176 Différentes compétences sont nécessaires pour réaliser cette modélisation : les étapes 3, 4 et 9 font appel aux domaines de
177 la physique théorique et expérimentale ; les étapes 6 et 7 relèvent des mathématiques appliquées ; enfin les étapes 5 et 8
178 nécessitent une approche pluridisciplinaire. Le but final de la modélisation est de pouvoir prédire le comportement du système
179 étudié le plus finement possible afin d'intégrer ce modèle à un ECU et de chercher un optimum de fonctionnement commun.
180 L'enjeu de la modélisation est de trouver le bon compromis entre le niveau de détails de la description du composant et la
181 simplicité du modèle final. Les phénomènes physiques modélisés sont complexes et leur exploitation dans du matériel embarqué
182 nécessite des ressources performantes. Leur justesse dépend du nombre de variables opératoires testées et de la rigueur avec
183 laquelle sont implémentés ces modèles et les paramètres.

185 A. Les liens Physiques de la Boîte Grise

186 La spectroscopie d'impédance électrochimique (SIE) est une technique très couramment utilisée pour la caractérisation des
187 piles à combustible. Le principal avantage de la SIE est de favoriser l'analyse dynamique des contributions des différents
188 phénomènes intervenants dans les pertes globales de la pile dans le domaine fréquentiel (Fig. 6.b). L'idée est d'exploiter le fait
189 que les différents phénomènes impliqués ont des constantes de temps différentes, ce qui permet théoriquement de les séparer.
190 Cette technique s'effectue à un point de fonctionnement fixe appelé point de polarisation caractérisé par un couple courant - tension
191 (I, V) autour duquel une faible perturbation de courant $I_0(\sin \omega t)$ est appliquée et la réponse en tension $V_0(\sin \omega t + \varphi)$ est
192 mesurée (Fig. 6.a). Selon la perturbation générée par une faible variation de courant (galvanostatique) ou de tension
193 (potentiostatique) autour du point de polarisation, une valeur d'impédance peut être calculée par la loi ohmique (8). Dans la
194 pratique, cette perturbation est souvent réalisée par une excitation sinusoïdale de courant. La réponse en tension de la pile à
195 cette excitation possède, pour une fréquence donnée, une amplitude (9) et une phase (10), traduites en parties réelle et imaginaire
196 de l'impédance. La variation de la fréquence du signal d'excitation permet alors de déterminer une impédance en exploitant le
197 rapport entre le signal collecté et l'excitation injectée. Le résultat est présenté dans le diagramme de Nyquist illustré en Fig.
198 6.c.

$$Z(\omega) = \frac{V(\omega)}{I(\omega)} = Z_{Re}(\omega) + j \cdot Z_{Im}(\omega) \quad (8)$$

$$|Z| = \sqrt{Z_{Re}^2 + Z_{Im}^2} \quad (9)$$

$$\varphi = \tan^{-1} \left(\frac{-Z_{Im}}{Z_{Re}} \right) \quad (10)$$

199 L'objectif spécifique des travaux proposés dans cet article est de présenter un modèle construit autour d'une approche boîte
200 grise, utilisant un couplage entre la spectroscopie d'impédance électrochimique (SIE) et la modélisation par circuit équivalent
201 électrique (MEE) afin de proposer en temps réel une analyse des éventuels dysfonctionnements du stack.

202 Dans un premier temps, la SIE permet de mesurer les différents phénomènes électrochimiques se produisant à l'intérieur
203 du stack en mesurant son impédance à différentes fréquences. Ce signal est ensuite interprété à l'aide d'un circuit équivalent
204 composé d'éléments électriques basiques (résistances, inductances, capacités) et d'éléments plus complexes représentant des
205 phénomènes spécifiques aux piles à combustible (éléments de Warburg et éléments des phases constantes (CPE) (Fig. 6.d). En
206 ajustant les paramètres de ce circuit aux données expérimentales SIE, on obtient un modèle capable de simuler le comportement
207 électrique de la pile et d'identifier des éventuelles anomalies liées à des dégradations internes. Cette approche combine
208 l'avantage des connaissances physiques de base sur le fonctionnement des piles à combustible (boîte grise) avec la flexibilité
209 des modèles basés sur les données pour un diagnostic précis et non invasif.

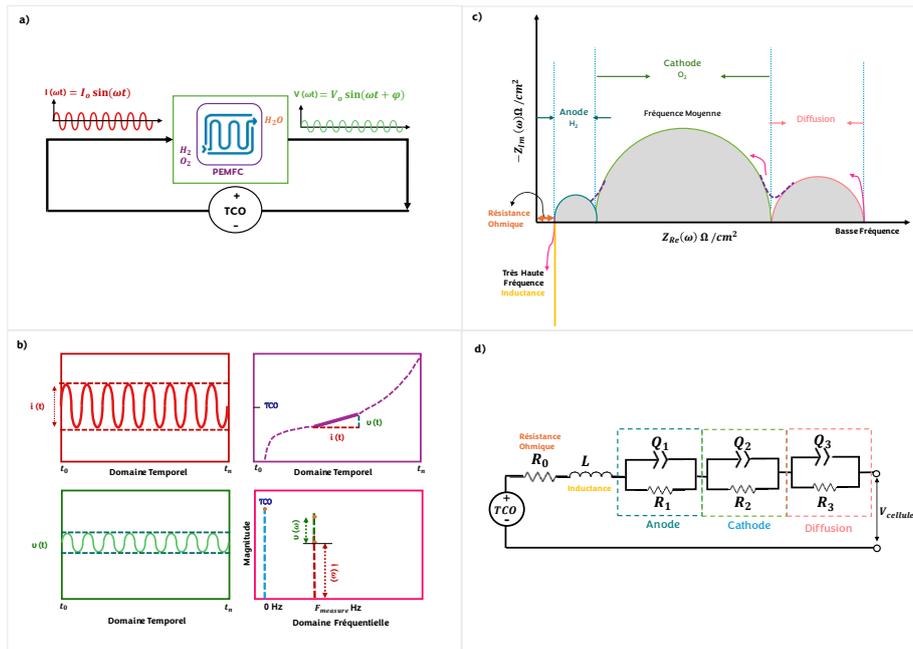


Fig. 6 : Principe Boite Grise : a) SIE b) Linéarisation du système dynamique c) Liens Multiphysiques d) Circuit électrique équivalent.

210
211

212

213 B. Données Expérimentales

214 Dans ce travail, l'ensemble des données expérimentales utilisées pour réaliser la SIE et l'ajustement MEE proviennent du
 215 Laboratoire FCLAB, unité de recherche CNRS, Belfort - France [7],[8]. Les courbes de polarisation et d'impédances ont été
 216 obtenues à partir de campagnes d'essais réalisées sur un stack composé de 5 cellules d'une surface unitaire de 100 cm². Les
 217 mesures ont été réalisées avec une densité de courant nominale de 0.7 A.cm⁻², et jusqu'à une puissance de 300 W. L'objectif de
 218 ces essais était d'étudier les dégradations liées au vieillissement et à la durabilité d'un stack neuf avec des conditions de
 219 fonctionnement permanentes (un courant de 70 A était imposé). Une caractérisation complète de la PàC était réalisée environ
 220 toutes les semaines, soit la temporalité suivante : $t = \{0, 48, 185, 348, 515, 658, 823, 991\}$ h. Nous avons choisi de baser notre
 221 étude pour 3 points distincts : 0h ; 515h ; 991h, soit en début de vie (BOL), à la moitié de la durée de vie (515h) et en fin de vie
 222 (991h ; EOL).

- 223 i. En premier lieu, les courbes de polarisation étaient réalisées (Fig. 7.a). Les tensions du stack et des cellules étaient
 224 mesurées avec une variation de la densité de courant de 0 A.cm⁻² à 1 A.cm⁻² sur 1000 s. Afin de maintenir les facteurs
 225 stœchiométriques constants, les débits d'air et d'hydrogène étaient réduits en conséquence jusqu'à un courant de 20
 226 A. En dessous de cette valeur, les débits d'air et d'hydrogène étaient maintenus constants et égaux à la valeur
 227 prédéfinie pour un courant de 20 A.
 228
 229 ii. Ensuite, une SIE était réalisée. Les mesures étaient effectuées dans l'ordre suivant : densité de courant constant de
 230 0,70 A.cm⁻², 0,45 A.cm⁻², 0,20 A.cm⁻². Les spectres étaient mesurés entre 50 mHz et 10 kHz. Entre chaque mesure,
 231 un temps de stabilisation de 15 minutes était respecté afin de garantir la stabilité du point de fonctionnement. Pour
 232 l'étude et le développement d'un modèle électrique équivalent (MEE), nous avons pris en compte des densités de
 233 courant de 0.20 A.cm⁻² et 0.7 A.cm⁻². La valeur de 0,2 A/cm² correspond à la densité de courant minimale (condition
 234 opératoire dégradante) à laquelle la SIE a été réalisée. La valeur de 0,7 A/cm² correspond à la densité de courant
 235 nominale de la PàC.

236 L'analyse de ces deux points de fonctionnement permet d'évaluer le comportement de la pile dans des conditions de
 237 fonctionnement normales et minimales dégradantes. Il est important de noter que la densité de courant peut modifier l'état
 238 interne de la pile à combustible, modifiant ainsi les résultats des SIE.

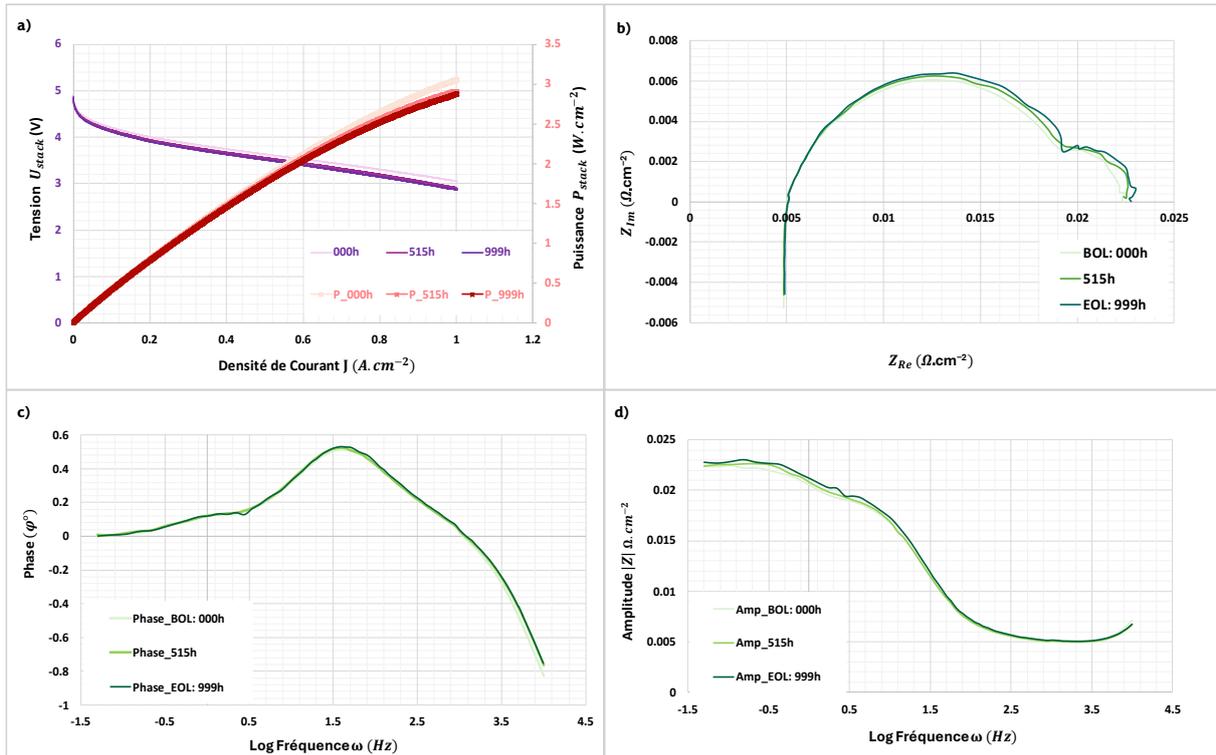


Fig. 7 : Courbes Expérimentales : a) Polarisation b) SIE : Courbe de Nyquist à 20 A.cm⁻² c) Représentation d'un Phase d'impédance d) l'amplitude d'impédance.

Une analyse d'impédance a été effectuée à la fin de chaque courbe de polarisation à différents niveaux de vieillissement de cellule (Fig. 7.b). La description détaillée de la génération de l'ensemble des données peut être trouvée dans les travaux de (Pahon et al., 2022) [7]. Les Figures. 7.c et Fig. 7.d représentent les diagrammes de Bode de la phase et de l'amplitude en fonction des fréquences logarithmiques du SIE et de l'état de santé respectif au début et à la fin de la vie de la pile à combustible. Nous pouvons certainement observer que les valeurs d'impédance sont distinctes à des valeurs de fréquence plus basses, ce qui indique déjà des taux de diffusion plus lents en fin de vie de la pile à combustible.

TABLE II : CONDITIONS OPERATIONNELLES DE LA SIE.

État	Heures (h)	Densité de Courant J (A.cm ⁻²)	Tension de la Stack U _{stack} (V)
Début de Vie (BOL)	000	0.2016	4
Milieu de Vie	515	0.2013	3.938
Fin du Vie (EOL)	999	0.2025	3.896

C. Identification des paramètres d'un modèle électrique équivalent

L'identification des paramètres vise à trouver la valeur optimale du vecteur de paramètres inconnus θ du modèle au circuit équivalent. Ce vecteur doit permettre au modèle identifié de représenter le plus fidèlement possible les valeurs expérimentales obtenues [8]. Comme le diagramme de Nyquist représente les parties réelles et imaginaires de la spectroscopie d'impédance, il devient essentiellement une fonction résiduelle ou non linéaire de minimisation par la méthode des moindres carrés, comme le montre l'équation (11).

$$\left\{ \min_x F(x) = \sum_i^N \left\{ \left(Z_{ReExp}(\omega) - Z_{ReModel}(\omega, \theta) \right)^2 + \left(Z_{ImExp}(\omega) - Z_{ImModel}(\omega, \theta) \right)^2 \right\} \right\} \quad (11)$$

Cette équation minimise la somme des carrés des écarts entre les parties réelles et imaginaires de l'impédance expérimentale (Z_{Exp}) et celle calculée par le modèle Z_{Model} pour différentes fréquences angulaires (ω).

259 Les paramètres du modèle sont calculés en se basant sur le circuit électrique équivalent décrit dans la Fig. 6.d, sauf la partie
260 inductance à très haute fréquence et la partie diffusion (étant donné que l'on travaille uniquement sur l'AME sans la couche de
261 diffusion GDL). L'équation (12) montre l'impédance totale du modèle proposé, qui est ensuite intégrée dans l'équation (11)
262 pour l'optimisation :

$$Z_{model} = \left\{ R_0 + L(j\omega) + \frac{R_1}{1 + R_1 Q_1 (j\omega)^{\phi_1}} + \frac{R_2}{1 + R_2 Q_2 (j\omega)^{\phi_2}} + \frac{R_3}{1 + R_3 Q_3 (j\omega)^{\phi_3}} \right\} \quad (12)$$

$$Z_{Re_{model}} = f \{ R_0, R_1, R_2, R_3, Q_1, Q_2, Q_3, \phi_1, \phi_2, \phi_3, \omega \} \quad (13)$$

$$Z_{Im_{model}} = f \{ L, R_1, R_2, R_3, Q_1, Q_2, Q_3, \phi_1, \phi_2, \phi_3, \omega \} \quad (14)$$

263
264 Les équations (13) et (14) détaillent ensuite le calcul des parties réelles et imaginaires de l'impédance du modèle ($Z_{Re_{model}}$ et
265 $Z_{Im_{model}}$) en fonction des paramètres du circuit équivalent et de la fréquence angulaire (ω) :

$$\theta = f \{ R_0, L, R_1, R_2, R_3, Q_1, Q_2, Q_3, \phi_1, \phi_2, \phi_3 \} \quad (15)$$

266 En résumé, le vecteur d'estimation de la fonction objectif comprend (θ) paramètres comme indiqué dans l'équation (15). Ces
267 11 paramètres correspondent aux éléments du circuit équivalent et à la fréquence angulaire utilisée pour l'analyse. Le processus
268 de développement est réalisé à l'aide d'optimiseurs globaux et d'un algorithme génétique présent dans l'environnement
269 MATLAB® sur un ordinateur disposant de 8 Go de RAM. L'algorithme génétique est une technique d'optimisation inspirée de
270 la sélection naturelle. Il simule l'évolution d'une population de solutions candidates en les croisant et en les mutant pour
271 identifier la solution la plus performante pour un problème donné [9]. En d'autres termes, il explore différentes combinaisons
272 de paramètres pour trouver la meilleure option possible.

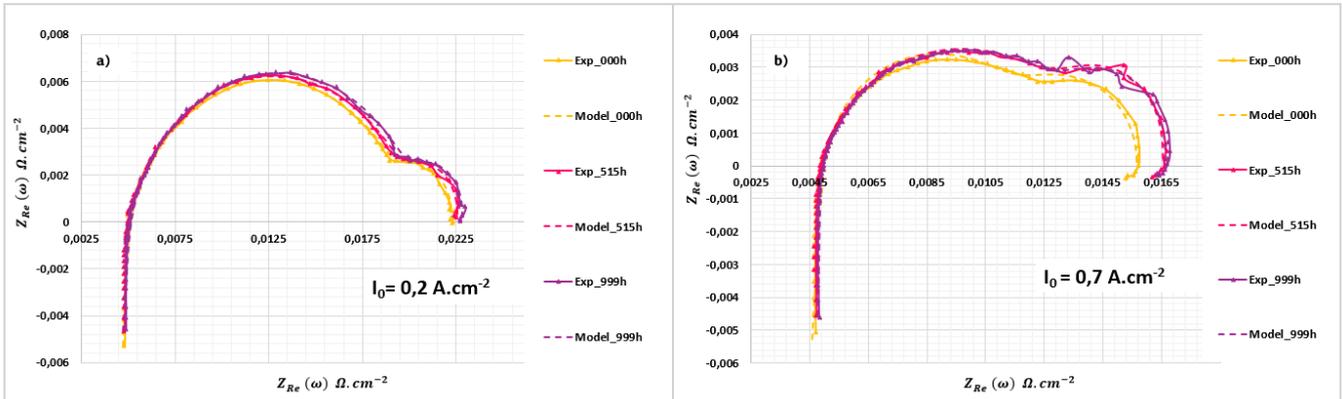


Fig. 8 : Comparaison entre les valeurs expérimentales et le modèle développé a) Densité de courant 0.2A.cm⁻², b) Densité de courant 0.7A.cm⁻².

275 Les Figures 8.a et 8.b montrent les résultats obtenus grâce au processus d'optimisation pour l'estimation des paramètres du
276 modèle (comparaison entre les données réelles et les données modélisées). Pour les deux densités de courant, le modèle est
277 capable d'estimer correctement les 11 paramètres sur 78 échantillons d'impédances entre 50 mHz -10 kHz avec un temps de
278 convergence de 2 à 3 minutes. La valeur moyenne en pourcentage de l'erreur absolue moyenne est de 0,052% pour des densités
279 de courant de 20 A.cm⁻² et de 0,078% pour 70 A.cm⁻², ce qui met en évidence la grande fiabilité du modèle proposé. Il est
280 capable de détecter la dégradation à des niveaux micro pour une système PàC.

IV. VALIDATION DU MODELE

283 Les données citées dans le présent article ont servi au développement d'un modèle dans l'environnement Matlab®. La
284 convergence atteinte entre les données réelles et les données théoriques illustre la nécessité de disposer de données qualitatives
285 et quantitatives pour alimenter l'approche « boîte grise » utilisée pour ce modèle. En effet, ce développement nécessite à la fois
286 la connaissance fine des caractéristiques physiques des composants et de leurs natures, mais aussi des données expérimentales
287 en nombre suffisant pour alimenter l'approche « base de données ».

290 Une fois le modèle développé, deux méthodes sont possibles pour sa validation finale :

291 1. Validation croisée :

292 Elle est destinée à tester la capacité prédictive du modèle. Si l'on a à disposition des données de validation (ou un échantillon
293 de tests), on compare les résultats de simulation du modèle à ces observations. Une dissociation entre les données de validation
294 et les échantillons de test devra être observée. Cette méthode est une technique de validation croisée parmi d'autres. On peut
295 également citer la statistique PRESS (Predicted Residual Error Sum of Squares ; analyse des non-régressions) : RMSE (Root
296 Mean Square Error ; Méthode des moindres carrés). Elle est calculée comme la somme des carrés des résidus de prédiction
297 pour ces observations. Elle consiste à faire 'n' estimations en enlevant à chaque fois une donnée expérimentale. On obtient alors
298 une estimation des paramètres avec lesquels on calcule la prédiction des paramètres. La statistique PRESS présente l'avantage
299 de réduire l'introduction d'erreur sur les paramètres du modèle et de fournir une meilleure capacité de prédiction.

300 TABLE III : RESULTATS DES ESTIMATIONS PARAMETRIQUES DE MEE

Paramètre de MEE	R_0 $\Omega.cm^{-2}$	L H	R_1 $\Omega.cm^{-2}$	Q_1 $F.s^{\phi_1-1}$	ϕ_1	R_2 $\Omega.cm^{-2}$	Q_2 $F.s^{\phi_2-1}$	ϕ_2	R_3 $\Omega.cm^{-2}$	Q_3 $F.s^{\phi_3-1}$	ϕ_3	RMSE $\Omega.cm^{-2}$	MAE $\Omega.cm^{-2}$	
Les échelles	10^{-5}	10^{-8}	10^{-3}	10^{-3}		10^{-3}			10^{-3}			10^{-4}	10^{-10}	
70 A	000 h	3.08	9.46	5.01	18.72	0.70	3.82	9.87	1.05	6.77	0.68	0.94	1.84	0.01
	515 h	1.25	7.40	4.72	39.90	0.23	2.46	11.3	1.24	9.37	1.48	0.80	1.40	0.46
	999 h	0.81	8.29	4.76	0.20	1.06	2.44	12.2	1.22	9.45	1.51	0.79	1.43	0.41
20 A	000 h	5.29	9.29	5.06	33.63	0.61	2.41	66.9	1.15	14.70	1.00	0.86	1.03	106.5
	515 h	3.85	8.35	5.11	16.98	0.67	2.38	65.8	1.17	15.09	1.02	0.87	1.00	0.93
	999 h	3.49	8.20	5.17	28.53	0.61	2.27	63.4	1.20	15.38	0.95	0.87	1.23	153.3

301 L'identification paramétrique complète du modèle proposé par l'algorithme génétique est détaillée dans le Tab.III. Les
302 paramètres obtenus indiquent une dégradation du stack dû à l'augmentation de la résistance interne notamment : la résistance
303 associée au transfert de charge, activation de la cathode R_2, Q_2 et la diffusion, R_3, Q_3 . Tandis que la résistance ohmique a
304 tendance à diminuer avec le vieillissement. Selon les valeurs expérimentales obtenues, la résistance anodique R_1 a un effet
305 négligeable sur le processus de vieillissement, ce qui reste vrai et cohérent avec les valeurs trouvées dans la littérature [9-11].
306

307 2. Etude de sensibilité paramétrique :

308 Elle donne le degré d'influence des paramètres sur les résultats du modèle et permet de détecter des corrélations éventuelles
309 entre eux. Elle peut permettre d'éliminer des paramètres non significatifs, ou de borner des paramètres trop sensibles qui
310 rendraient difficile la convergence de l'algorithme.
311

312 V. DISCUSSIONS ET PERSPECTIVES

313 Les résultats obtenus et décrits dans le présent article sont issus d'un échantillon de données pour un stack dans des conditions
314 opératoires données. Des essais complémentaires en situations réelles seraient nécessaires afin de confronter les résultats
315 expérimentaux avec ceux obtenus par le modèle, dont des essais dysfonctionnels (injection de défauts, fonctionnement aux
316 limites ou hors plages de fonctionnement). Ces essais permettraient de qualifier le modèle en faisant varier les conditions
317 opératoires mais aussi de le valider avec des stacks et des cellules de dimensions variées.

318 Le modèle développé a été en partie testé dans des systèmes embarqués[12],[13]. Les performances obtenues prédisposent
319 l'utilisation de ce modèle dans un ECU embarqué. A terme, ce modèle pourra être couplé avec les modèles d'autres composants
320 du système, rendant alors une image exhaustive de l'état du système. De plus, l'observation des réactions du système à des
321 perturbations permettra de confirmer la performance du modèle pour le diagnostic et la détection de défaillances. Le plan
322 d'expérience à réaliser lors des campagnes d'essais pour la génération des données pourraient être réalisé en se basant sur les
323 exigences techniques identifiées lors de l'AMDEC.

324 Enfin, l'utilisation de la spectroscopie d'impédance électrochimique embarquée sera possible prochainement grâce à l'utilisation
325 de convertisseurs de nouvelle génération. En effet, des études portent [14],[15] sur le déploiement de cette fonction dans les
326 futures générations de produits. Ainsi, le suivi de l'état de fonctionnement et de santé des piles à combustible dans les
327 applications embarquées sera de plus en plus fiable grâce à cette technologie embarquée.

328 Des travaux futurs pourront porter sur l'intégration d'une capacité d'analyse de la fiabilité dans ce modèle. Cette capacité
329 supplémentaire permettra de détecter les défauts tout au long de la durée de vie d'une pile à combustible, complétant ainsi le
330 processus MBSA.
331

332 VI. CONCLUSION

333 L'évolution des chaînes de traction des véhicules coïncide avec des nouvelles méthodes de développement produits, dont
334 l'approche MBSA détaillée dans cet article est issue. Nous avons vu que cette modélisation est basée sur un processus
335 d'identification des causes de défaillance, incluant une AMDEC simplifiée qui a été présentée.

336 Puis un modèle de circuit équivalent a été développé sur la base des données expérimentales qui ont permis de former un jumeau
337 numérique du système. Les premiers résultats obtenus par le modèle développé illustrent le degré d'influence des paramètres
338 sur la finesse des résultats et l'importance de disposer de données exhaustives fiables. A terme, la qualification du modèle avec
339 un plus grand nombre de données permettra de confirmer ses performances pour la détection des défauts et ses capacités de
340 diagnostic.
341 Ainsi, lors du fonctionnement du système, le modèle pourra diagnostiquer au plus tôt les anomalies fonctionnelles et agir sur
342 les paramètres de régulation de la pile à combustible avec une plus grande précision. Son couplage avec des convertisseurs
343 intégrant des fonctionnalités de spectroscopie d'impédance électrochimique est un requis afin de disposer des données d'entrées
344 nécessaires à son fonctionnement.
345 Enfin, la qualification finale du modèle pourra être réalisée en environnement embarqué dans des conditions d'utilisation
346 réelles. Il pourra également être enrichi avec les modèles d'autres composants du système, fournissant ainsi une image
347 exhaustive de l'état du système complet.
348

349 REMERCIEMENTS

350 Les auteurs remercient les équipes des unités de recherche du FCLAB sur les systèmes hydrogène pour le partage des données
351 expérimentales, la société Seres Technologies, et plus particulièrement Jean-Marc Mitterrand et Julien Rullier pour nous avoir
352 offert l'opportunité de réaliser ce travail de recherche. Enfin, nous remercions l'IMdR pour l'organisation de la conférence
353 congrès $\lambda\mu 24$.

354 REFERENCES

- 355 [1] Grzegorz, P., Matus, M., Johan, B., & Bastien, B.-C. (2020). EU CLEAN HYDROGEN MONITOR 2020.
356 <https://hydrogeneurope.eu/wpcontent/uploads/2021/11/Clean-Hydrogen-Monitor-2020.pdf>
- 357 [2] Noguer, N. (2015). Aide à l'analyse fiabiliste d'une pile à combustible par la simulation [Doctoral Thesis] UTBM.
- 358 [3] Whiteley, M., Dunnett, S., & Jackson, L. (2016). Failure Mode and Effect Analysis, and Fault Tree Analysis of
359 Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells. International Journal of Hydrogen Energy, 41(2), 1187–1202.
360 <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.11.007>
- 361 [4] Collong, S., & Kouta, R. (2015). Fault tree analysis of proton exchange membrane fuel cell system safety. International
362 Journal of Hydrogen Energy, 40(25), 8248–8260. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.04.101>
- 363 [5] Pahon, E., Hissel, D., & Yousfi-Steiner, N. (2022). A review of accelerated stress tests dedicated to proton exchange
364 membrane fuel cells – Part I: Fuel cell component level. Journal of Power Sources, 546.
365 <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.231895>
- 366 [6] Agirre, J. A., Etxeberria, L., Barbosa, R., Basagiannis, S., Giantamidis, G., Bauer, T., Ferrari, E., Labayen Esnaola,
367 M., Orani, V., Öberg, J., Pereira, D., Proença, J., Schlick, R., Smrčka, A., Tiberti, W., Tonetta, S., Bozzano, M., Yazici,
368 A., & Sangchoolie, B. (2021). The VALU3S ECSEL project: Verification and validation of automated systems safety
369 and security. Microprocessors and Microsystems, 87, 104349. <https://doi.org/10.1016/j.micpro.2021.104349>
- 370 [7] Pahon, E., Péra, M.-C., Bouquain, D., & Hissel, D. (2022). Impact of current ripples on the durability of proton
371 exchange membrane fuel cells based on two ageing datasets. Data in Brief, 45, 108601.
372 <https://doi.org/10.1016/j.dib.2022.108601>
- 373 [8] Rafael, G., Mickaël, H., Daniel, H., Samir, J., Marine, J., Elodie, L., Simon, M., Elodie, P., Marie-Cécile, P., &
374 Noureddine, Z. (2014). IEEE PHM 2014 Data Challenge. IEEE: Prognostics and Health Management .
375 <http://www.phmconf.org/>
- 376 [9] Wu, P., Daoudi, M., Ait-Idir, W., Touhami, S., El-Kaddouri, A., Perrin, J.-C., Mainka, J., & Lottin, O. (2022). A
377 Hybrid Method Combining Genetic and Nelder-Mead Algorithms for the Interpretation of Electrochemical Impedance
378 Data - Application to Proton Exchange Membrane Fuel Cells. 2022 International Workshop on Impedance
379 Spectroscopy (IWIS), 105–110. <https://doi.org/10.1109/IWIS57888.2022.9975125>
- 380 [10] Touhami, S., Dubau, L., Mainka, J., Dillet, J., Chatenet, M., & Lottin, O. (2021). Anode aging in polymer electrolyte
381 membrane fuel Cells I: Anode monitoring by ElectroChemical impedance spectroscopy. Journal of Power Sources,
382 481, 228908. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2020.228908>
- 383 [11] Lim, I. S., Lee, Y. Il, Kang, B., Park, J. Y., & Kim, M. S. (2022). Electrochemical performance and water management
384 investigation of polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) using gas diffusion layer with
385 polytetrafluoroethylene (PTFE) content gradients in through-plane direction. Electrochimica Acta, 421, 140509.
386 <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2022.140509>
- 387 [12] Vaidya, S., Depernet, D., Laghrouche, S., & Chrenko, D. (2023). State of temperature detection of Li-ion batteries by
388 intelligent gray box model. Journal of Power Sources, 585, 233624. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233624>
- 389 [13] Paul, P., Micheál, L., Sasha, D., & Greg, A. (2022). Designing a portable system for in situ failure prediction in fuel
390 cells. <https://www.embedded.com/designing-a-portable-system-for-in-situ-failure-prediction-in-fuel-cells/>

- 391 [14] Depernet, D., Narjiss, A., Gustin, F., Hissel, D., & Péra, M.-C. (2016). Integration of electrochemical impedance
392 spectroscopy functionality in proton exchange membrane fuel cell power converter. *International Journal of Hydrogen*
393 *Energy*, 41(11), 5378–5388. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.02.010>.
- 394 [15] EU Health Code Project, (2018). Public abstract “EIS Board gen2 prototype” deliverable D3.3 patented by BRITON
395 et UNISA <https://www.pemfc.health-code.eu/>

396