

Analyse d'un
essai d'endurance
par la méthode
des surfaces de
réponse

Chapitre V

Analyse d'un essai d'endurance par la méthode des surfaces de réponse

V.1 INTRODUCTION

Les progrès réalisés sur les piles à combustibles (PàC), au cours des années 90 et jusqu'à nos jours, ont permis d'entrevoir leur utilisation potentielle dans de nouveaux domaines, tels que ceux des ordinateurs portables, des cogénérateurs stationnaires et des véhicules. Cependant, ces différents objets équipés de PàC demeurent encore bel et bien des prototypes et leur viabilité industrielle à grande échelle se heurte de plein fouet à l'un des grands points d'interrogation qui subsiste sur cette technologie : la durée de vie. Celle-ci est notamment sujette aux conditions d'utilisation de la pile, à la taille de son empilement. Aujourd'hui, de nombreux stacks présentent une espérance de durée de vie de l'ordre du millier d'heures. Un certain nombre de laboratoires ont ainsi communiqué ces dernières années sur des essais d'endurance réalisés sur des périodes de 1000 - 2000 heures [Smo05] [Esc05] [Lui06]. Pour devenir intéressantes dans le domaine des applications embarquées, les PàC doivent atteindre une durée de vie de 5000h pour l'automobile et de 20000 à 40000 heures dans le cas des transports en commun. Les objectifs ne sont pas encore atteints.

Le L2ES et l'INRETS mènent ensemble des travaux visant à contribuer à l'amélioration des performances des générateurs PAC en termes de durée de vie et de fiabilité. Le but principal est de rechercher et d'assurer pour la PàC des conditions de fonctionnement optimales, conduisant à des rendements élevés au niveau du système mais aussi à une fiabilité et à une longévité accrues. Dans cette optique, les choix technologiques concernant les divers auxiliaires nécessaires (organes de conditionnement des réactifs, convertisseurs électroniques, éléments de stockage tampon de l'énergie...) doivent être évalués et adaptés afin de placer la PàC dans le meilleur environnement physique possible. Parmi les différentes contraintes liées à l'application PàC, certaines peuvent être identifiées comme des points clés vis-à-vis de l'endurance : la dynamique de courant, la température de fonctionnement, les niveaux de polluants dans les gaz. Les impacts de ces paramètres sur le vieillissement de la pile sont étudiés à Belfort grâce à l'ensemble des équipements disponibles sur la plateforme d'essais. Un programme de recherche a

été initié (contrat DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02) et la première phase a été consacrée à l'étude d'une pile PEM 100W (pile BZ100-1), dotée de trois cellules, et fonctionnant en régime stationnaire pendant 1000 heures dans des conditions proches de son régime nominal. Cette première expérience sert à présent d'essai de référence aux autres études qui sont menées sur d'autres piles 100W similaires et placées dans différents états opératoires.

Le travail présenté dans ce chapitre vise à mener une analyse expérimentale du premier essai d'endurance réalisé, au moyen des outils et méthodes des plans d'expériences. Le vieillissement étant un phénomène extrêmement complexe à modéliser, nous avons privilégié une approche expérimentale appelée méthodologie des surfaces de réponses (cf. chapitre II) qui permet notamment la recherche d'un optimum au sein d'un domaine expérimental donné.

Ce chapitre est organisé comme suit :

- Etude des relevés de courbes de polarisation de l'essai de vieillissement réalisé sur la pile BZ100-1, pour mieux mettre en évidence les pertes en performances de la pile au cours du vieillissement.
- Exploitation des résultats permettant d'évaluer l'impact sur le vieillissement de la pile de différents paramètres, contrôlables ou non.
- Optimisation des performances de la PàC par un choix adapté des niveaux pour les facteurs considérés.

V.2 METHODOLOGIE EXPERIMENTALE ET PROCEDURE DE TEST

Le stack investigué est testé sur le banc d'essai 1kW mis au point par le laboratoire [Har03 rapport interne] [[Har05 rapport interne] [Hiss05].

V.2.1 CARACTERISTIQUES DE LA PILE ETUDIEE

La pile à combustible BZ100-1 a été mise en service dans notre laboratoire début février 2004. C'est une pile PEM (à membrane polymère échangeuse de protons) similaire à celle qui a servi de support aux essais et analyses décrits dans le chapitre III. Cependant, elle ne comporte que trois cellules qui ont pour chacune d'entre elles une surface active de 100cm². Les membranes sont de type GORE MESSGA Primea Series 5510.

Les conditions de fonctionnement nominal de cette pile sont les suivantes :

- Courant nominal délivré par la pile : 50A.
- Température nominale : 55°C avec point de rosée cathode 45°C (TrAIR).
- Facteurs de surstoéchiométries anode : FSA = 1.4 et cathode : FSC = 4.
- Pression de service maximale : 1500mbar absolus.
- Différence de pression maximale entre les compartiments anode et cathode (DeltaP maxi) admissible : 600mbar.

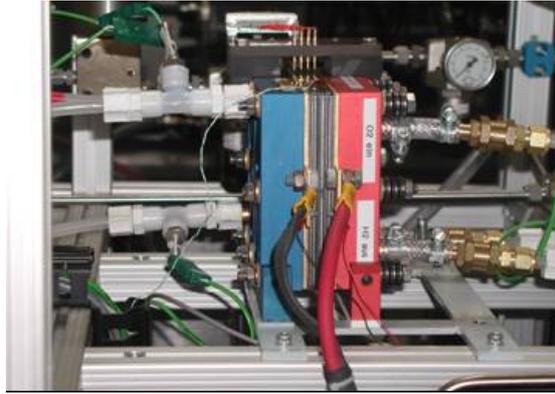


Figure V- 1 : La pile BZ100-1 à 3 cellules montée sur le banc d'essai

V.2.2 TYPE DE TEST APPLIQUE A LA PILE ETUDIEE

La pile BZ100-1 a servi de base au premier test d'endurance réalisé en régime stationnaire sur un point de fonctionnement proche des conditions nominales (alimentation en hydrogène/air, surstoéchiométries anode/cathode de 2/4, courant de 50A, température de pile de 55°C, humidité relative de l'air entrant dans la pile de 100%, température de l'air de 25°C, hydrogène sec) pendant une durée de 1000h (période de mars/avril 2004). Les essais ont été effectués en mode ouvert : les débits de gaz ont été régulés en amont du stack et les vannes situées en aval du stack étaient inactives.

Grâce aux enregistrements réalisés par le biais de l'interface Labview du banc 1kW, les évolutions des principales variables physiques sur la durée de 1000 heures peuvent être représentées et exploitées. La Figure V- 2 présente la tension de pile durant la période d'essai.

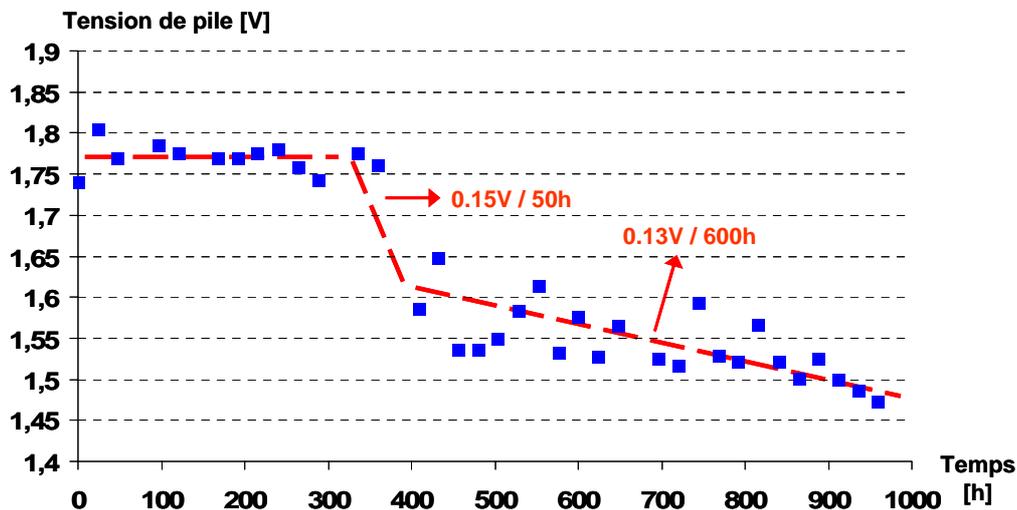


Figure V- 2 : Évolution de la tension de pile en fonction du temps

Au tout début de l'essai, durant les premières heures de fonctionnement, une légère augmentation des performances de la pile a été décelée. Ensuite, le comportement de la tension de pile fut sensiblement constant durant les 350 heures suivantes. Une dégradation rapide s'est alors produite pendant une cinquantaine d'heures (0,15V / 50h pour la pile). Un niveau assez

régulier de dégradation a finalement été observé jusqu'à la fin de l'essai (environ 0.1V / 600h pour la pile). Aucun problème important n'a été rencontré sur la pile pendant l'essai.

Outre l'acquisition et le suivi des données au cours de l'expérience, deux types de caractérisations, par relevés de courbes de polarisation et de spectre d'impédance, ont été effectués à intervalles de temps réguliers.

Pour les caractérisations statiques (courbes de polarisations), quatre jeux de facteurs de surstoéchiométries anode/cathode (FSA/FSC) ont été retenus : 2/5 ; 2/4 ; 2/3 ; 1.5/3.5. Chaque courbe de polarisation a été réalisée en incrémentant le courant de pile de 0 à 70A par des pas de 0.5A. Quand la valeur du courant atteinte était de 70A ou que l'une des trois tensions de cellules atteignait le seuil minimum de 380mV, le relevé des courbes de polarisation était arrêté. Des informations supplémentaires sur la procédure utilisée pour la caractérisation par courbes de polarisation peuvent être trouvées dans [Har04] [Hiss05] [Can05 rapport DRIRE].

V.2.3 PRESENTATION DES RESULTATS

La Figure V- 3 représente l'ensemble des courbes de polarisation relevées pour des surstoéchiométries anode/cathode égales à 2/5. Chaque caractéristique est associée à une durée de fonctionnement réalisée. Ainsi, Hinit correspond à une courbe de polarisation moyenne, réalisée à partir de trois enregistrements répétés avant le début du vieillissement. H101 signifie que la pile a fonctionné pendant 101 heures avant que la séquence de caractérisation correspondante ne soit entamée.

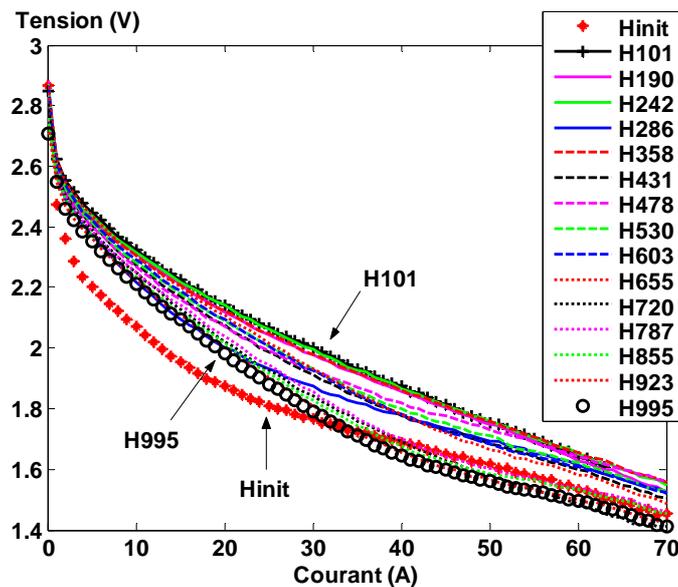


Figure V- 3 : Ensemble des relevés de courbe de polarisation effectués pour les surstoéchiométries 2/5

Remarque :

Dorénavant, avant le début de chaque essai d'endurance réalisé au L2ES, trois séquences de caractérisations différentes, précédées pour chacune d'entre elles d'une procédure de conditionnement (une demi-heure de fonctionnement à 50A dans les conditions indiquées au début du paragraphe V.2.2) sont effectuées de manière à vérifier l'homogénéité des trois résultats obtenus. Pour la pile BZ100-1, les procédures de conditionnement initial n'avaient à l'époque pas été complètement mises en oeuvre. Aussi les relevés initiaux des courbes de polarisation (Hinit) tracés pour les quatre couples de stoéchiométries seront-ils ici à analyser avec quelques précautions.

Les courbes de polarisations (courant – tension) relatives à chacun des quatre couples de surstoechiométries peuvent être affichées en trois dimensions, en « 3D » (Figure V- 4), sous la forme d'une nappe, en fonction de la durée de vieillissement. Les lignes de niveaux correspondant à la tension de pile apparaissent dans le plan Temps – Courant. Par exemple, pour la pile BZ100- 1 et les surstoechiométries 2/5, nous obtenons la nappe de la figure V- 4.

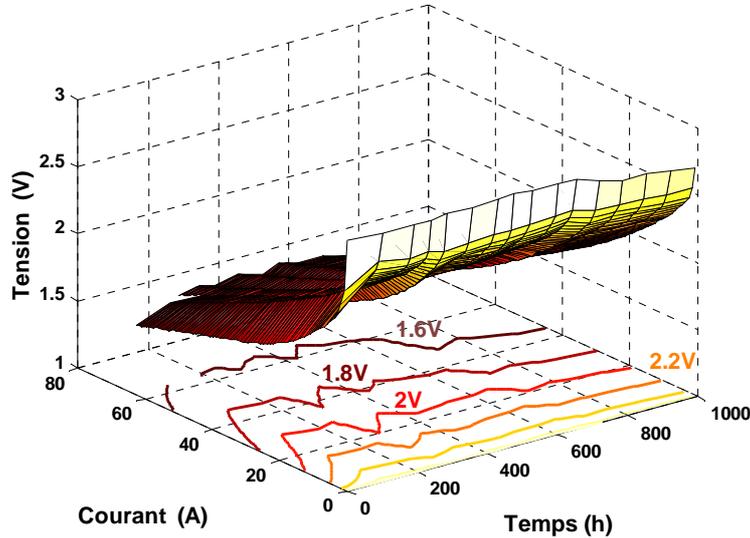


Figure V- 4 : Affichage en 3D de l'ensemble des relevés de courbe de polarisation effectués pour les surstoechiométries 2/5

Les lignes de niveaux correspondant à la tension de pile peuvent être affichées seules en deux dimensions, « en 2D », dans le plan Temps – Courant (Figure V- 5).

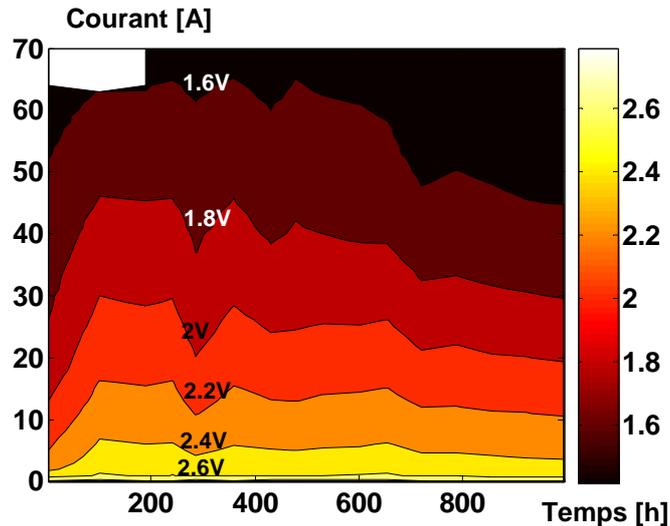


Figure V- 5 : Affichage en 2D (plan Temps – Courant) de l'ensemble des relevés de courbe de polarisation effectués pour les surstoechiométries 2/5, lignes de niveaux correspondant à la tension de pile [V]

Remarque :

La partie non colorée qui apparaît sur la figure ci-dessus (pour des courants supérieurs à 63A et des temps inférieurs à 200h) est due au fait qu'une courbe de polarisation n'a pas pu être enregistrée jusqu'à son terme, c'est-à-dire jusqu'à une valeur maximale de courant égale à 70A. Cette absence d'enregistrement provient dans ce cas d'un arrêt de la procédure d'enregistrement automatique suite à un passage d'une tension cellule sous un seuil bas fixé à 380mV.

L'affichage en 2D, grâce à l'emploi de lignes de niveaux « tension de pile », de l'ensemble des relevés de courbes de polarisation effectués pendant le vieillissement fait apparaître, dans le plan Temps – Courant, une amélioration des performances de la pile pendant les 100 premières heures de fonctionnement. Les 200 heures suivantes correspondent à une période de stabilisation des performances. C'est entre la 300^{ème} et 400^{ème} heure de fonctionnement qu'apparaît une dégradation du rendement de tension de la pile. Celle-ci s'effectue de manière plutôt régulière. Les petits pics présents sur les lignes de niveaux « tension de pile » peuvent quant à eux être attribués aux impacts des séquences de caractérisation réalisées, voire aussi à quelques arrêts forcés de la procédure de vieillissement qui ont eu lieu suite à des problèmes techniques rencontrés soit au niveau du banc de test, soit au niveau de l'équipement de la plateforme.

Ce genre de graphique fournit déjà une représentation visuelle claire et simple du vieillissement de la PàC. Néanmoins, cette manière de faire ne peut pas s'avérer suffisante si, par exemple, il nous faut trouver les conditions de fonctionnement optimales de la pile menant à la tension de pile la plus élevée en fonction du temps. Pour cela, un modèle numérique / statistique de la dégradation de la pile est nécessaire. Dans cette optique, nous appliquons dans le prochain paragraphe la méthodologie des surfaces de réponse (MSR).

V.3 ANALYSE DE L'ESSAI DE VIEILLISSEMENT PAR LA METHODE DES SURFACES DE REPOSE (MSR)

D'un point de vue mathématique, on associe bien souvent à la notion d'optimisation les termes de maximisation ou de minimisation. De nombreuses méthodes d'optimisation existent depuis fort longtemps. Elles consistent dans leur approche méthodologique à analyser le profil topographique d'un relief donné, à suivre par exemple la plus grande pente pour atteindre, au moins localement, une cible fixée par un cahier des charges. Il faut naturellement pour cela disposer de l'équation du relief, appelé dans ce contexte une surface de réponse.

Lorsque l'équation de cette surface de réponse n'est pas connue, on peut en définir une approximation par une surface de régression dont les coefficients seront estimés à partir des résultats d'essais. Comme il est souhaitable d'obtenir une information en termes de réponse prédite avec une incertitude minimale, il est important de disposer de manière judicieuse les essais au sein du domaine expérimental. La définition de ces essais dépend de la nature du domaine et du modèle choisi pour son exploitation. C'est l'objet de la construction de tout plan d'expériences.

La MSR constitue le second volet de la méthode des plans d'expériences. Cette technique vise à déterminer d'une façon quantitative les variations de la fonction réponse vis-à-vis des facteurs d'influence significative. Les modélisations de la fonction réponse peuvent également servir de base à la recherche de conditions optimales.

La MSR doit donc être vue comme un ensemble d'outils permettant la compréhension et l'exploitation d'objets simplificateurs de la fonction réponse étudiée, plus largement et plus aisément exploitables (cf. II.7).

V.3.1 CONSTRUCTION D'UN PLAN D'OPTIMISATION

Dans la MSR, la construction d'un plan d'optimisation se fait en considérant un certain nombre d'étapes [Exp05].

→ Définition des objectifs de l'étude

L'objectif de cette étude est d'étudier l'impact de la durée de l'essai de vieillissement sur les performances de la pile, en considérant différents niveaux de courant de pile et de surstoechiométrie cathode (FSC). Une étude plus complète de la fonction réponse témoignant des performances du stack doit pouvoir servir de base à la recherche de conditions optimales (dépendant du courant de pile, de FSC).

→ Définition de la ou des réponse(s) caractérisant l'objectif

L'objectif étant précisé, il importe de choisir la réponse la plus pertinente qui permettra de savoir si cet objectif est atteint ou non, et de savoir si l'on est éloigné ou proche du but recherché. Ici, la MSR sera utilisée afin d'analyser l'essai de vieillissement et en vue d'établir un modèle relatif à la dégradation de la tension de pile, la réponse.

→ Faire l'hypothèse d'un modèle polynomial

Dès lors que les objectifs et les réponses ont bien été définis, il convient d'adopter une démarche pour tenter d'atteindre, de la manière la plus efficace possible, les objectifs fixés. D'un point de vue méthodologique, les PE pour l'étude des surfaces de réponse proposent d'explorer les domaines expérimentaux à partir de modèles polynomiaux du second degré, traduisant des quadriques. Cette hypothèse nécessite toutefois de travailler dans des espaces définis à partir de facteurs quantitatifs continus.

→ Définition des facteurs et des niveaux

Dans notre étude, les facteurs considérés sont la durée ou temps de vieillissement (associé à la variable t), la surstoechiométrie air (FSC) et le courant de charge (I). La tension de PàC est la réponse. Les niveaux adoptés pour les facteurs sont récapitulés dans le Tableau V- 1.

Tableau V- 1 : Niveaux des différents facteurs

Facteurs	Niveaux			
	Minimum	Intermédiaire	Maximum	Nombre de niveaux
Temps de vieillissement (t)	0h	Temps liés aux caractérisations	1000h	16
FSC (FSC)	3	4	5	3
Courant (I)	0A	Pas de 10A	70A	8

→ Définition du Domaine Expérimental

La définition du Domaine Expérimental (DE) découle directement de l'étape précédente, à savoir de la définition des facteurs, de leurs niveaux et des contraintes relationnelles pouvant éventuellement exister entre les niveaux des facteurs. Dans le cas de la MSR, la nature quantitative des facteurs induit un nombre de combinaisons infini pour le domaine expérimental,

chacun des facteurs pouvant prendre un nombre infini de niveaux particuliers, dans la plage de variation qui leur est associée.

Dans notre cas d'étude, il n'existe pas de contraintes relationnelles définies entre les facteurs indépendants. Le DE est limité par un hyper-cube, chacun des facteurs variant dans l'intervalle $[-1 ; +1]$, si l'on adopte les coordonnées centrées réduites. Le DE qui nous intéresse est isotrope. La géométrie régulière d'un tel domaine facilitera la distribution uniforme des expériences en son sein.

V.3.2 CONSTRUCTION ET DEFINITION DU MODELE EMPIRIQUE

Dans le cadre des plans destinés à l'étude des surfaces de réponse, une forme de modélisation est généralement retenue : il s'agit des modèles polynomiaux du second degré, qui s'écrivent sous la forme générale suivante :

$$y = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i \cdot x_i + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} \cdot x_i^2 + \sum_{i=1}^k \sum_{j=i+1}^k \beta_{ij} \cdot x_i \cdot x_j + \varepsilon \quad (\text{V. 1})$$

Dans le cas présent, le modèle polynomial relatif à l'expression de la tension de pile en fonction des facteurs s'écrit donc :

$$\begin{aligned} U_{pile} = & \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot \text{FSC} + \beta_3 \cdot I + \beta_{11} \cdot t^2 + \beta_{22} \cdot \text{FSC}^2 + \beta_{33} \cdot I^2 \\ & + \beta_{12} \cdot t \cdot \text{FSC} + \beta_{13} \cdot t \cdot I + \beta_{23} \cdot \text{FSC} \cdot I + \varepsilon \end{aligned} \quad (\text{V. 2})$$

Les termes de premier degré ainsi que la constante β_0 permettent de définir un hyperplan, auquel viendront s'ajouter les courbures représentées par les termes du second degré. D'un point de vue terminologique, les symboles β_{ii} représentent les coefficients des termes carrés du second degré. Le signe des estimations de ces coefficients peut être interprété en tant qu'orientation vers le haut ou vers le bas des courbures de la surface de réponse.

Le nombre d'inconnues d'un polynôme de degré 2 est établi à partir de la formule suivante :

$$p = \frac{(k+2)!}{k!2!} \Rightarrow p = \frac{(3+2)!}{3!2!} = 10 \text{ inconnues} \quad (\text{V. 3})$$

L'écriture du modèle permet de définir le nombre d'inconnues à estimer à partir de l'analyse des résultats d'essais. L'analyse mathématique des résultats s'appuie sur la méthode des moindres carrés pour l'estimation des inconnues du modèle. Celle-ci a déjà été présentée dans le paragraphe (II. 7. 1).

V.3.3 CONSTRUCTION DU PLAN D'EXPERIENCES

Une première condition relative à la construction d'un PE peut s'écrire sous la forme suivante, dans laquelle N représente le nombre de traitements expérimentaux distincts du plan et p le nombre d'inconnues : $p \leq N$.

La définition des différentes combinaisons des niveaux des facteurs, appelées traitements expérimentaux ou essais, doit permettre non seulement d'estimer de la façon la plus précise possible les coefficients du modèle, mais aussi de minimiser l'incertitude sur les prévisions

effectuées à partir de ce même modèle. Dans notre cas d'étude, le plan utilisé est un plan factoriel complet avec le plus grand nombre de degrés de liberté possible par facteur pour diminuer l'incertitude et la variance du modèle.

V.3.4 ANALYSE GLOBALE DES RESULTATS D'ESSAIS

Le Tableau V- 2 fait apparaître le plan d'expérimentation retenu, la matrice (tronquée) du modèle et les résultats d'essais.

Tableau V- 2 : Plan d'expérimentation, matrice du modèle et résultats d'essais (valeurs codées ou coordonnées centrées réduites)

N°	Matrice du modèle X										Y (U _{pile})
	I	x ₁ (Temps)	x ₂ (FSC)	x ₃ (Courant)	x ₁ ²	x ₂ ²	x ₃ ²	x ₂ x ₁	x ₁ x ₃	x ₂ x ₃	Tension [V]
1	1	-1.0000	-1	-1	1.0000	1	1	1.0000	1.0000	1.	2.8618
2	1	-0.8667	-1	-1	0.7511	1	1	0.8667	0.8667	1	2.8680
3	1	-0.7333	-1	-1	0.5378	1	1	0.7333	0.7333	1	2.8585
4	1	-0.6000	-1	-1	0.3600	1	1	0.6000	0.6000	1	2.8482
5	1	-0.4667	-1	-1	0.2178	1	1	0.4667	0.4667	1	2.8537
48	1	1.0000	-1	-0.7143	1.0000	1	0.5102	1.0000	0.7143	0.7143	2.3241
49	1	-0.8667	-1	-0.7143	0.7511	1	0.5102	0.8667	0.6190	0.7143	2.3296
50	1	-0.7333	-1	-0.7143	0.5378	1	0.5102	0.7333	0.5238	0.7143	2.3112
51	1	-0.6000	-1	-0.7143	0.3600	1	0.5102	0.6000	0.4286	0.7143	2.3170
383	1	0.8667	1	1	0.7511	1	1	0.8667	0.8667	1.0000	1.4172
384	1	1.0000	1	1	1.0000	1	1	1.0000	1.0000	1.0000	1.4140

Les différences observées entre la plus petite et la plus grande valeur de tension de pile sont suffisamment importantes pour justifier la construction d'un modèle destiné à décrire ces variations.

Remarque : Géométrie sphérique ou cubique [Kar04]

La matrice d'expérience peut être établie au sein d'un domaine sphérique ou cubique. Ce choix est essentiellement lié à la présence ou non d'un réglage de référence, définissant généralement le centre du domaine.

- *Domaine sphérique : l'expérimentateur désire explorer la zone du plan autour de son centre défini comme point de référence.*
- *Domaine cubique : l'expérimentateur désire prévoir les variations de la variable de réponse pour des combinaisons des niveaux extrêmes des facteurs.*

V.3.4.1 Analyse mathématique des résultats d'essais

L'analyse mathématique consiste à estimer, grâce à la méthode des moindres carrés, les p coefficients du modèle et les N résidus, à savoir les écarts entre les valeurs observées et les valeurs prévues par le modèle pour chacun des traitements du plan d'expériences. La méthode des moindres carrés garantit une estimation sans biais des coefficients du modèle.

Le modèle numérique de la tension de pile en fonction des paramètres temps, FSC et courant est donné par la relation (V. 4).

$$\begin{aligned} \hat{U}_{pile} = & 1.0811 - 0.1183 \cdot t + 0.0293 \cdot FSC - 0.6211 \cdot I \\ & - 0.061 \cdot t^2 - 0.013 \cdot FSC^2 + 0.323 \cdot I^2 \\ & + 0.063 \cdot t \cdot FSC - 0.066 \cdot t \cdot I + 0.043 \cdot FSC \cdot I \end{aligned} \quad (V. 4)$$

La fonction *rstool* de Matlab™ permet d'exécuter une régression et offre aussi une forme de représentation possible pour la surface multidimensionnelle de réponse. Son interface graphique permet la visualisation et l'exploration de l'hyper-surface résultant d'un polynôme tel que (V. 4). La fonction *rstool* fait apparaître trois graphes différents :

- le premier graphe représente l'évolution de la tension de pile prédite en fonction du courant (pour une valeur fixe de FSC et pour une durée de vieillissement donnée),
- le deuxième graphe représente l'évolution de la tension de pile prédite en fonction du facteur FSC (pour une valeur de courant et une durée de vieillissement donnée),
- et le dernier graphe montre l'évolution de la tension de pile prédite en fonction du temps de vieillissement (pour des valeurs de courant et de FSC spécifiées par l'utilisateur de l'interface).

Avec l'interface présentée Figure V- 6, les niveaux (exprimés en coordonnées centrées réduites) peuvent être modifiés en déplaçant les curseurs (intersection des segments verticaux et horizontaux en pointillés) et la mise à jour des valeurs prédites peut être observée. Les représentations graphiques font apparaître les intervalles de prédiction avec 95% de confiance (courbes en pointillés).

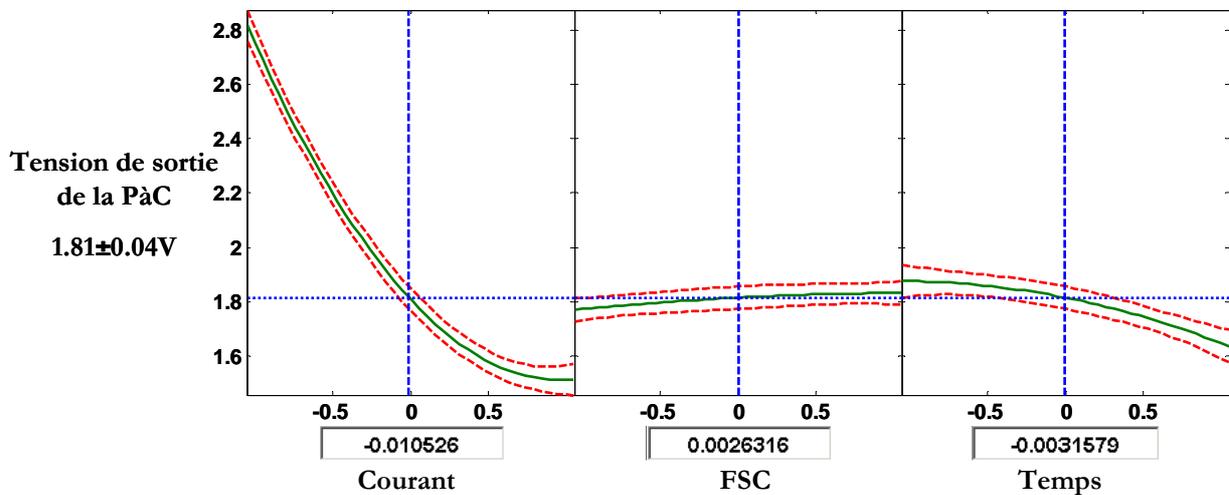


Figure V- 6 : Exemple de tension de pile prédite en fonction des trois facteurs

Les résultats affichés au moyen de l'interface *rstool* pour l'intervalle de temps compris entre 0 et 1000h ont permis de constater et/ou de confirmer le fait que le courant de charge a un impact majeur sur la tension de pile. Le facteur temps influe aussi sur la tension du stack, mais à un degré moindre. En comparaison, le facteur FSC n'a que peu d'influence sur le rendement en tension de la pile.

V.3.4.2 Analyse graphique du modèle

Un graphique est un vecteur de communication des informations obtenues grâce au modèle empirique : il facilite donc l'interprétation et la restitution des variations des résultats d'essais. De nombreux graphiques sont disponibles pour restituer de manière interprétable l'équation du modèle empirique. Dans le contexte des plans d'expériences destinés à l'étude des surfaces de réponse, cette restitution s'effectue essentiellement sous deux formes différentes :

- La *surface de réponse*, qui matérialise la surface de régression à partir d'un graphique dans un espace à trois dimensions.
- Les *courbes iso-réponses*, qui constituent une projection de la surface de réponse dans le plan horizontal. Elles s'interprètent comme les courbes de niveaux dessinées sur une carte topographique. Une courbe iso-réponse représente le résultat d'une coupe de la surface de réponse par un plan horizontal.

1. Surface de réponse

La surface de réponse matérialise la variation de la tension de pile en fonction du courant et de la durée (ou temps) de vieillissement.

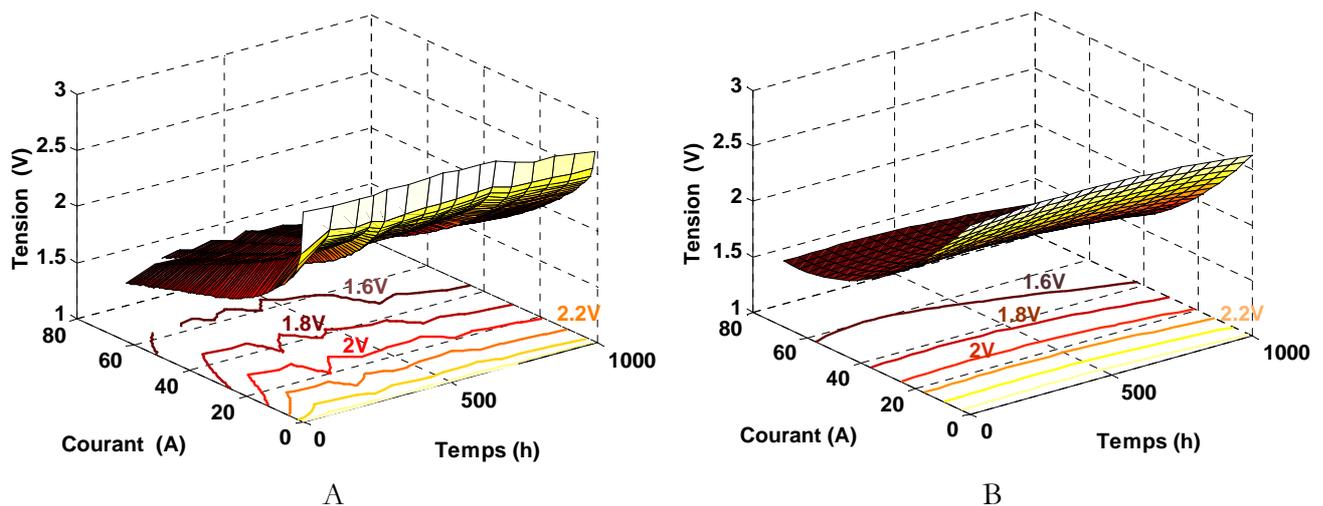


Figure V- 7 : Surfaces de réponse relatives à la tension de pile en fonction des facteurs courant et temps de vieillissement

A: surface de réponse liée à la tension de pile expérimentale

B : surface de réponse liée à la tension de pile prédite

La restitution sous forme graphique de l'équation du modèle permet d'illustrer les variations de la réponse et éventuellement d'identifier une zone du domaine expérimental dans laquelle la tension de sortie de pile est maximale.

2. Courbes iso-réponses

Les courbes iso-réponses relatives à la tension de pile pour FSC=5 sont représentées par la Figure V- 8.

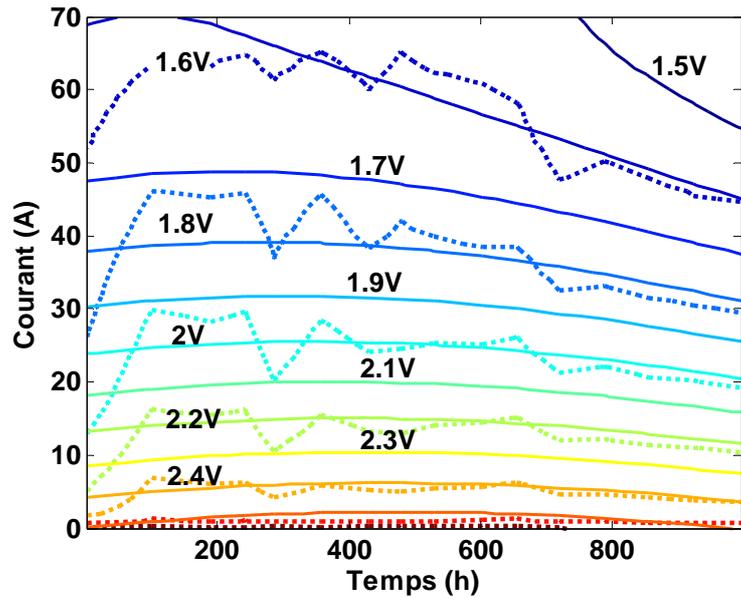


Figure V- 8 : Superposition des courbes iso-réponses relatives à la tension de pile mesurée (...) et prédite (—)

A l'image des courbes topographiques, les courbes iso-réponses permettent de matérialiser dans un plan le relief de la surface de réponse.

3. Graphe des résidus

Il s'agit ici de proposer une représentation graphique des résidus. En fonction de l'allure des graphes obtenus, il est possible de se rendre compte visuellement s'il reste encore de l'information à extraire de l'ensemble des résidus. Pour cela, il faut regarder si les résidus sont distribués aléatoirement ou non.

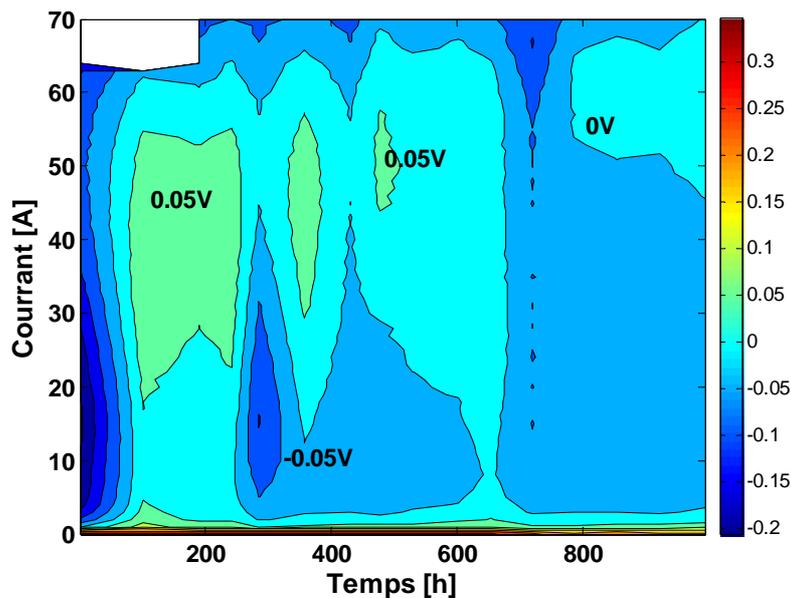


Figure V- 9 : Graphe des résidus pour FSC=5

Une évaluation de la qualité descriptive du modèle peut être faite à partir du résiduel. Examiner soigneusement le graphe des résidus peut en effet nous indiquer si les hypothèses formulées dans la modélisation sont raisonnables et si le choix du modèle est approprié. Les résidus sont représentés ici sous la forme de graphes en courbes de niveaux. L'objectif est de prouver ainsi que le modèle quadratique proposé est tout à fait adéquat pour la représentation des évaluations des performances de la PàC. La différence entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites est ici inférieure à 0.05V sur la plupart de la surface du plan temps – courant considéré. Le niveau de l'erreur est lié au choix de la fonction d'approximation et en particulier à son ordre. Le choix de prendre ou de ne pas prendre en considération les interactions dans le modèle a également une influence sur les résidus. Ici, la distribution des résidus en fonction des prédictions ne fait pas apparaître de forme géométrique simple, ce qui nous conduit à penser que le modèle choisi n'occulte pas de phénomène particulier.

V.3.4.3 Analyse statistique du modèle

L'équation du modèle empirique n'est qu'une approximation de la réalité. L'estimation des coefficients du modèle polynomial du second degré s'appuie sur des résultats d'essais qui sont, pour chacun des traitements du plan d'expériences, des valeurs particulières d'une variable aléatoire. La mise en œuvre de tests statistiques doit permettre aux opérateurs de porter un jugement sur les résultats obtenus, à savoir un modèle décrivant la variation de la réponse dans le domaine expérimental.

Cette étape de l'analyse statistique aboutit à la construction du tableau d'analyse de régression et à la détermination de la qualité descriptive du modèle.

L'analyse de régression consiste à expliquer la variation totale de la réponse définie à partir de la somme des carrés des écarts entre les résultats d'essais et leur moyenne :

Remarque :

Dans notre application numérique, le nombre total de traitements N est égal à 380, et non à 384 du fait de l'absence de certaines mesures sur les relevés de courbe de polarisation (pour cause de tensions de cellules inférieures à 380mV).

$$SCT = \sum_{i=1}^N (y_i - \bar{y})^2 = \sum_{i=1}^{380} (y_i - \bar{y})^2 \Rightarrow SCT = 73,3387 \quad (V. 5)$$

avec : y_i : les réponses mesurées,
 \bar{y} : la moyenne arithmétique des réponses mesurées.

La quantité SCT (pour Somme des Carrés Totale) est indépendante du modèle postulé. On décompose ensuite cette somme de carrés en une somme de deux termes SCM et SCE (respectivement pour Somme des Carrés associés au Modèle et Somme des Carrés associés aux Ecarts ou résidus). Le premier terme traduit la variation des réponses calculées autour de leur moyenne :

$$SCM = \sum_{i=1}^N (\hat{y}_i - \bar{y})^2 = \sum_{i=1}^{380} (\hat{y}_i - \bar{y})^2 \Rightarrow SCM = 70,9612 \quad (V. 6)$$

avec : \hat{y}_i : les réponses calculées par le modèle.

Le terme SCE traduit la somme des carrés des résidus, dont on sait qu'elle est minimale :

$$SCE = \sum_{i=1}^N (y_i - \hat{y}_i)^2 = \sum_{i=1}^{380} (y_i - \hat{y}_i)^2 \Rightarrow SCE = 2.3775 \quad (V. 7)$$

L'analyse statistique du modèle dans sa globalité se poursuit par la construction d'un test statistique, visant à affecter une probabilité à l'hypothèse nulle (H_0) qui consiste à affirmer que le modèle ne permet pas de décrire la variation des résultats d'essais. Le test est basé sur la comparaison du rapport de deux variances à une valeur donnée. On définit pour cela la valeur statistique, notée F_{obs} , à partir de la relation suivante :

$$F_{obs} = \frac{SCM / ddl_M}{SCE / ddl_E} = \frac{SCM / p - 1}{SCE / N - p} \Rightarrow F_{obs} = 1,227 \cdot 10^3 \quad (V. 8)$$

Les quantités $(p-1)$ et $(N-p)$ correspondent respectivement aux nombres de degrés de liberté affectés à SCM et SCE (ddl_M et ddl_E). Pour le $i^{ème}$ traitement du plan d'expériences, la valeur observée y_i du résultat d'essai représente une valeur particulière de la variable aléatoire caractérisant la réponse pour ce traitement. Par voie de conséquence, la statistique F_{obs} est elle-même une variable aléatoire (valeurs de la Loi de Fisher-Snedecor, cf. II. 7).

Pour un niveau de signification α égal à 5% :

$$F_{critique} = F_{(\alpha, ddl_M, ddl_E)} \Rightarrow F_{critique} = 2,2758 \cdot 10^{-27} \approx 0 \quad (V. 9)$$

A partir de cette même fonction de répartition, une probabilité à l'hypothèse nulle (H_0) peut être également exprimée. Cette probabilité étant très faible ici, l'hypothèse nulle est rejetée : le modèle permet de décrire la variation des résultats d'essais.

Le tableau d'analyse de régression (Tableau V- 2) regroupe les différentes étapes permettant d'aboutir au calcul de cette probabilité.

Tableau V- 2 : Tableau d'analyse de régression

Source	Somme des carrés	Degrés de liberté	Carré moyen	F_{obs}	Probabilité
Modèle	70,9612	370	5,2141	1,227.10 ³	≈0
Résidus	2,3775	9	3,7855		
Total	73,3387	380			

Le tableau d'analyse de régression permet d'aboutir immédiatement au calcul du coefficient de détermination R^2 :

$$R^2 = \frac{SCM}{SCT} \Rightarrow R^2 = 1 - \frac{SCE}{SCT} \quad (V. 10)$$

Un classement de différents sous-modèles a été réalisé ici suivant la valeur du coefficient de détermination R^2 liée à chacun d'entre eux. Le Tableau V- 3 récapitule plusieurs sous-modèles possibles pour la tension de pile et leurs coefficients R^2 respectifs. Cette table met parfaitement en évidence la qualité de chacun des modèles. Le tableau montre aussi l'importance majeure du facteur courant (I) par rapport aux facteurs temps de vieillissement (t) et FSC.

Tableau V- 3 : Exemple de sous-modèles avec leurs coefficients de détermination R^2

Modèle prédit	Coefficient de régression multiple R^2
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I$ $+ \beta_{11} \cdot t^2 + \beta_{22} \cdot FSC^2 + \beta_{33} \cdot I^2$ $+ \beta_{12} \cdot t \cdot FSC + \beta_{13} \cdot t \cdot I + \beta_{23} \cdot FSC \cdot I$	0.9676
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I$ $+ \beta_{11} \cdot t^2 + \beta_{22} \cdot FSC^2 + \beta_{33} \cdot I^2$ $+ \beta_{12} \cdot t \cdot FSC + \beta_{13} \cdot t \cdot I + \beta_{23} \cdot FSC \cdot I$ $+ \beta_{123} \cdot t \cdot FSC \cdot I$	0.9736
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I$ $+ \beta_{11} \cdot t^2 + \beta_{22} \cdot FSC^2 + \beta_{33} \cdot I^2$	0.9520
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I$ $+ \beta_{22} \cdot FSC^2 + \beta_{33} \cdot I^2$	0.9144
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I$ $+ \beta_{33} \cdot I^2$	0.9140
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I$	0.9110
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC$	0.0418
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_1 \cdot t$	0.0374
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_2 \cdot FSC$	0.0042
$\hat{U}_{pile} = \beta_0 + \beta_3 \cdot I$	0.8684

Quelques observations supplémentaires peuvent être formulées :

- Le meilleur modèle reste le modèle complet.
- Les moins bons sous-modèles nous renseignent sur les termes de moindre importance.

V.3.4.4 Analyse statistique des coefficients du modèle

Une autre étape de l'analyse statistique du modèle concerne l'analyse statistique des coefficients basée sur l'hypothèse nulle suivante :

(H_0) : le coefficient β_i est nul.

La probabilité associée à cette hypothèse est obtenue à partir du test statistique de comparaison d'une moyenne à la valeur zéro [Exp05] [Sch98]. Pour cela la statistique, notée t_{obs} , est établie à partir de la relation suivante :

$$t_{\text{obs}} = \frac{|\beta_i|}{\sigma(\beta_i)} \quad (\text{V. 11})$$

La valeur de l'estimateur de β_i est une valeur particulière d'une variable aléatoire qui dépend en effet directement des résultats d'essais et du modèle postulé. L'incertitude associée à sa détermination est définie par le dénominateur $\sigma(\beta_i)$ qui traduit l'erreur type, à savoir l'écart type d'un estimateur. L'erreur type est définie à partir de la relation suivante :

$$\sigma(\beta_i) = \sqrt{\text{Var}(\beta_i)} \quad \Rightarrow \quad \sigma(\beta_i) = \sqrt{c_{ii}\sigma^2} \quad (\text{V. 12})$$

Le coefficient de variance c_{ii} correspond au terme diagonal de rang i de la matrice de dispersion notée $(X^tX)^{-1}$ dans la méthode des moindres carrés. La variance expérimentale est notée σ^2 dans l'expression précédente de l'erreur type.

Dans les logiciels, la variance résiduelle est adoptée comme estimation de la variance expérimentale (σ_r), la statistique t_{obs} peut alors être exprimée sous la forme :

$$t_{\text{obs}} = \frac{|\beta_i|}{\sigma_r \sqrt{c_{ii}}} \quad \text{avec} \quad \sigma_r^2 = \frac{\text{SCE}}{\text{ddl}_E} \quad (\text{V. 13})$$

Cette statistique est une variable aléatoire dont les valeurs suivent une fonction de répartition théorique, appelée *loi de t* ou encore *loi de Student*. Cette fonction de répartition est utilisée pour savoir à partir de quelle valeur particulière, appelée valeur critique, le numérateur de la quantité t_{obs} est significativement différent de zéro. Pour un niveau de signification α égal à 5%, on obtient :

$$t_{\text{critique}} = t_{(1-\alpha/2, \text{ddl}_E)} \quad \Rightarrow \quad t_{\text{critique}} = 0.8225 \quad (\text{V. 14})$$

A partir de cette même fonction de répartition, il est possible d'affecter une probabilité à l'hypothèse nulle (H_0) énoncée précédemment. Les résultats de l'analyse des coefficients sont généralement regroupés dans un tableau tel que le Tableau V- 4, dont la dernière colonne indique la probabilité associée à l'hypothèse nulle (H_0).

Tableau V- 4 : Tableau d'analyse des coefficients

		Coefficient	Erreur-type	$t_{\text{obs}} (\times 10^2)$	Probabilité
β_0	I	1.0811	0.0095	1.8924	0
β_1	t	-0.1183	0.0071	-0.1666	0
β_2	FSC	0.0293	0.0050	0.0578	0
β_3	I	-0.6211	0.0063	-0.9797	0
β_{11}	t ²	-0.06109	0.0126	-0.0477	0
β_{22}	FSC ²	-0.01302	0.0087	-0.0144	0.1495
β_{33}	I ²	0.3233	0.0111	0.2928	0
β_{12}	t×FSC	0.0631	0.0087	0.0714	0
β_{13}	t×I	-0.0663	0.011	-0.0601	0
β_{23}	FSC×I	0.0438	0.0078	0.0571	0

Tous les coefficients présents dans le modèle sont significatifs, à l'exception de celui correspondant au terme FSC². Il convient donc de conserver tous les monômes (hormis celui lié

au terme FSC²) dans la définition du polynôme de second degré pour décrire la variation des résultats d'essais dans le domaine expérimental.

V.4 DISTORSION LOCALE DE LA SURFACE DE REPONSE

Notamment grâce au graphe des résidus de la Figure V- 9, nous avons pu constater la présence d'écarts plus ou moins forts entre les mesures et les valeurs prédites. Ceux-ci peuvent en particulier être considérés comme non négligeables au cours des premiers instants de l'essai d'endurance (pour un temps de vieillissement inférieur à 100h). Pour tenter de résorber ces écarts et afin d'améliorer la qualité de prédiction du modèle, obtenue par la MSR, différentes solutions sont envisageables. La première solution renvoie à l'augmentation de l'ordre du polynôme. Le problème est que le nouveau modèle, devenu « trop précis », pourrait alors cesser d'offrir une tendance globale pour l'évolution de la tension en fonction du temps. L'emploi d'un polynôme du second degré permet en effet dans notre application de lisser efficacement la réponse et d'occulter des variations de la tension localisées dans le temps et a priori peu ou pas reproductibles. Une autre solution possible pour améliorer l'ajustement d'un modèle à des données consiste en l'emploi d'une transformation [War98] [War99] [Viv02]. L'article écrit par M. Redford et al [Red99] présente une méthode alternative, appelée ajustement par covariance, qui permet de générer des modèles localement plus ajustés, en anglais : "Covariance based models". Le principal avantage de cette méthode réside dans le fait qu'elle améliore l'ajustement des surfaces de réponse aux données expérimentales sans pour autant modifier le degré du polynôme. La méthode est bien adaptée pour faire en sorte par exemple que le modèle écarte ou prenne moins en considération un ou plusieurs points expérimentaux qui ne seraient pas représentatifs du phénomène étudié. Nous nous sommes fortement inspirés de la méthodologie proposée dans [Red99].

V.4.1 AJUSTEMENT LOCAL DU MODELE

La méthode d'ajustement local est illustrée par le tableau V- 5. Un modèle polynomial de second degré est d'abord ajusté classiquement au moyen de la méthode des moindres carrés (colonne : Résultats du modèle par MSR). Les points de traitement pour lesquels les valeurs des résidus sont considérées comme excessives doivent être identifiés. On suppose bien sûr que ces points représentent la réalité du phénomène étudié et qu'ils ne correspondent pas à des mesures incorrectes. Ainsi, un nouveau vecteur de réponse (colonne : Données du modèle localement ajusté) est généré en substituant aux résultats donnés par modèle quadratique original les résultats expérimentaux qui sont considérés comme mal représentés par celui-ci. Dans notre étude, les iso-réponses de la Figure V- 8 font apparaître un léger manque d'ajustement du modèle original aux mesures réalisées pendant la durée des cent premières heures de l'essai de vieillissement. Ces points, correspondant aux lignes grisées du tableau, ne sont pas considérés ici comme des mesures incorrectes et traduisent une amélioration du rendement de tension dans une période qui pourrait être qualifiée de rodage. Un nouveau modèle est donc établi (colonne : Résultats du modèle localement ajusté), le but étant de proposer une meilleure représentation des performances de la PàC pendant le commencement de l'essai, sans opérer de changement sur l'ordre du polynôme.

Tableau V- 5 : Tableau représentant la procédure d'ajustement conduisant à une meilleure prédiction locale

N°	Courant (A)	FSC	Temps (h)	Résultats expérimentaux	Résultats du modèle par MSR	Données du modèle localement ajusté	Résultats du modèle localement ajusté
				y <i>U_{pile}</i>	\hat{y} <i>\hat{U}_{pile}</i>	y_{cov} <i>U_{pile}_{aj}</i>	\hat{y}_{cov} <i>\hat{U}_{pile}_{aj}</i>
1	0	3	1	2,861	2,766	2,861	2,759
2	0	3	101	2,868	2,774	2,86	2,772
3	0	3	190	2,858	2,777	2,777	2,778
4	0	3	242	2,848	2,777	2,777	2,780

15	0	3	923	2,669	2,653	2,653	2,647
16	0	3	995	2,712	2,627	2,627	2,617
17	0	4	1	2,857	2,746	2,857	2,732
18	0	4	101	2,871	2,758	2,871	2,750
19	0	4	190	2,861	2,764	2,764	2,760
20	0	4	242	2,850	2,766	2,766	2,764

47	0	5	923	2,733	2,655	2,655	2,656
48	0	5	995	2,706	2,634	2,634	2,632
49	10	3	1	2,324	2,449	2,324	2,441
50	10	3	101	2,329	2,451	2,329	2,448
51	10	3	190	2,311	2,448	2,448	2,449
52	10	3	242	2,317	2,445	2,445	2,447

383	70	5	923	1,417	1,465	1,465	1,466
384	70	5	995	1,414	1,437	1,438	1,436

Les termes numériques de l'équation du modèle final obtenu (V. 15) sont déterminés grâce à une nouvelle régression.

$$\begin{aligned} \hat{U}_{pile_{aj}} = & 1.814 - 0.112 \cdot t + 0.027 \cdot FSC - 0.621 \cdot I \\ & - 0.076 \cdot t^2 - 0.013 \cdot FSC^2 + 0.324 \cdot I^2 \\ & + 0.068 \cdot t \cdot FSC - 0.064 \cdot t \cdot I + 0.044 \cdot FSC \cdot I \end{aligned} \quad (V. 15)$$

La représentation par iso-réponses tension de stack, dans le plan Temps – Courant, du nouveau modèle est donnée ci-dessous pour différentes valeurs du facteur FSC.

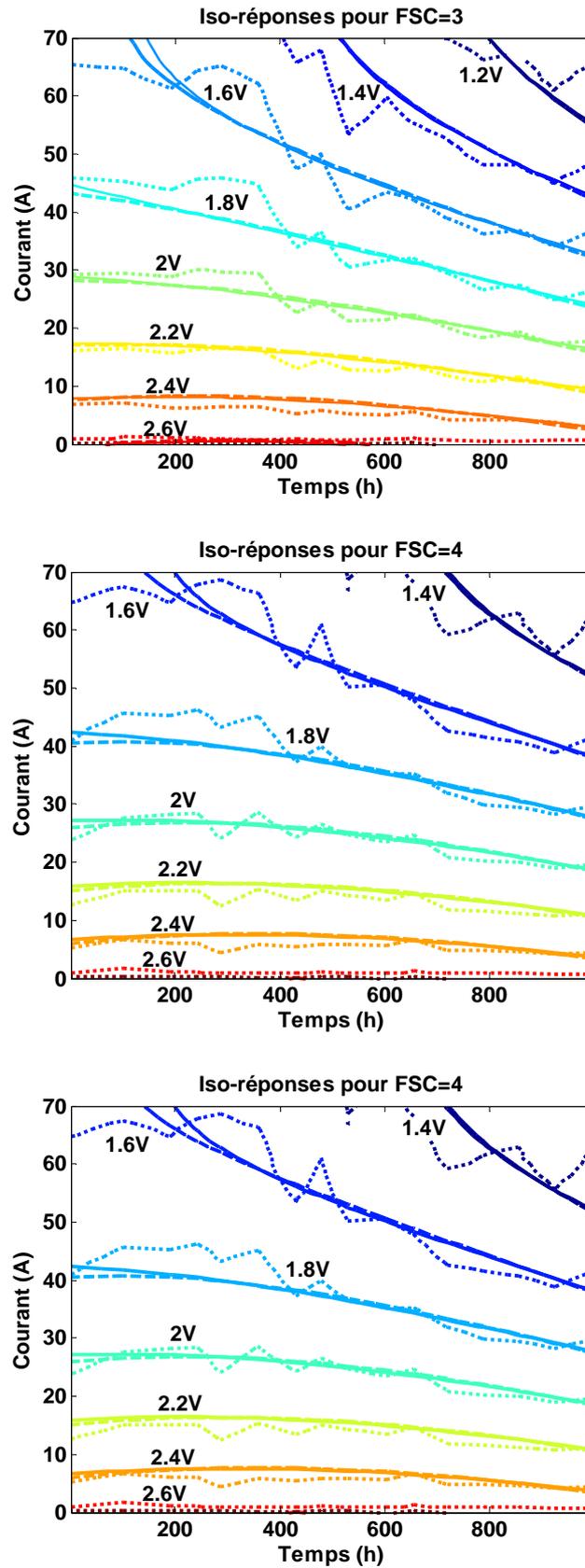


Figure V- 10 : Superposition des courbes par iso-réponses tension de pile relatives aux données expérimentales (...), au modèle obtenu par MSR (—) et au modèle obtenu par la méthode conduisant à un ajustement local (— —)

Grâce à la superposition des résultats donnés d'une part par le modèle original (V. 4) et d'autre part par le polynôme issu de la procédure d'ajustement local (V. 15), une amélioration de la prédiction du nouveau modèle aux premiers instants du vieillissement est mise en évidence (Figure V- 10). La surface de réponse obtenue au moyen de l'ajustement local a été courbée par rapport à celle établie avec la MSR initiale, pour un temps de vieillissement inférieur à 100h. Les points pour des temps supérieurs à 200h ont été soit inchangés soit peu affectés par la transformation.

V.4.2 DETERMINATION DE LA FSC OPTIMALE DURANT LE TEST DE VIEILLISSEMENT

Le but de l'optimisation est de définir le taux de surstoéchiométrie air conduisant à la tension de pile la plus élevée possible dans de domaine expérimental Temps - Courant exploré. Le problème peut être résolu sur le plan calcul au moyen de la fonction *quadprog* de MatlabTM.

La Figure V- 11 fait apparaître les résultats de l'optimisation. Au début de l'essai d'endurance, FSC égal à trois permet d'obtenir les meilleures performances pour les basses valeurs de courant. Avec le temps, une surstoéchiométrie cathode égale à cinq devient nécessaire pour atteindre des tensions de pile élevées. Ce résultat peut être pris en considération par exemple pour dimensionner ou concevoir un compresseur alimentant en air le système PàC. En effet, le besoin en comburant au niveau du stack augmente avec le temps, de sorte que la consommation de l'auxiliaire compresseur devient au fur et à mesure également plus élevée.

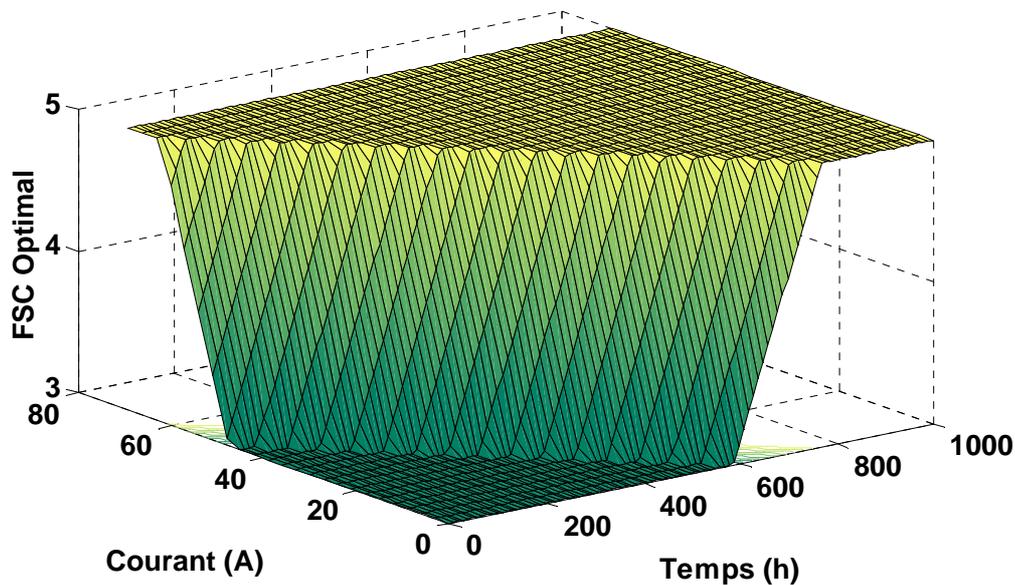


Figure V- 11 : Surface de réponse relative au facteur de surstoéchiométrie optimal permettant d'obtenir une tension de pile maximale

V.5 APPLICATION DE LA METHODE DES SURFACES DE REPONSE DUALE ("DUAL RESPONSE SURFACE") POUR L'ANALYSE DU TEST D'ENDURANCE.

V.5.1 INTRODUCTION

La notion de plans produits que nous allons mettre en oeuvre dans ce chapitre tient une place de choix au sein de l'ensemble des travaux du Dr Taguchi. Le concept de base de ces plans est fondé sur l'idée suivante : un produit est dit robuste si sa réponse est peu modifiée par des perturbations, des paramètres extérieurs non maîtrisés appelés bruits.

Les facteurs influant sur la réponse peuvent en effet être classés suivant deux catégories :

- Les facteurs contrôlables,
- Les facteurs bruits.

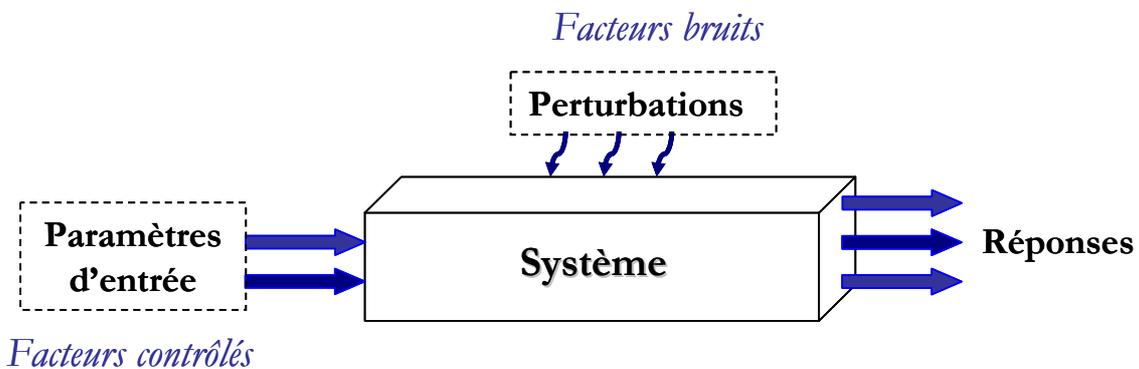


Figure V- 12 : Classification des facteurs

Taguchi identifie trois types de facteurs de bruit : *le bruit externe*, qui est la variation subie dans les conditions environnementales, telles que l'humidité, les vibrations, la température, et d'autres ; *les bruits internes* ou les détériorations tels que l'usure du produit, l'effet du temps sur le produit ou d'autres changements dans les composantes ou dans les matériaux par rapport au temps et à son utilisation ; finalement *les bruits de conception* que l'on retrouve lors de la conception des pièces en séries. Pour résumer le tout, disons que la philosophie de la qualité du Dr. Taguchi est de rendre insensible aux bruits (aux trois types de bruits mentionnés précédemment) la valeur cible du résultat à partir de la connaissance d'un plan d'expériences. L'objectif de la méthodologie est de trouver une configuration des facteurs contrôlés robuste vis-à-vis des facteurs bruits afin d'augmenter la qualité du système. Un système est d'autant plus robuste que la dispersion de fonctionnement, engendrée par des facteurs extérieurs non contrôlés, est faible.

Dans notre cas d'étude, l'objectif est de rendre la PàC étudiée et ses performances plus robustes ou moins sensibles aux influences externes.

V.5.1.1 Construction des plans produits

La méthode proposée par Taguchi consiste à définir deux plans d'expériences distincts et à réaliser le produit de ces deux plans. Le premier plan est relatif aux facteurs contrôlés et le second aux facteurs bruits.

Dans notre étude de la robustesse des performances électriques de la pile vis-à-vis de son vieillissement, les facteurs pris en compte sont les suivants :

Tableau V- 6 : Niveaux des facteurs

Facteurs contrôlables				
Courant [A]	0	20	40	60
FSC	3	4	5	
Facteur bruit				
Temps [h]	0	200	Pas de 200h	1000h

Le but de ce plan est de chercher la configuration des facteurs qui résiste le mieux au bruit (ici, le temps). L'étude du plan produit revient à étudier toutes les interactions entre les facteurs principaux (FSC et courant de charge) et les bruits (le temps).

Tableau V- 7 : Plan produit pour l'étude de la tension de pile

Plan principal			Plan bruit				Moyenne	Variance
			N°	(1)	(2)	(6)		
N°	FSC	I	Temps	H0	H101	H995		
(1)	3	0		Upile ₁₋₁	Upile ₁₋₂	Upile ₁₋₆	Ūpile ₁	σ ² ₁
(2)	3	10		Upile ₂₋₁	Upile ₂₋₂	Upile ₂₋₆	Ūpile ₂	σ ² ₂
(3)	3	20		Upile ₃₋₁	Upile ₃₋₂	Upile ₃₋₆	Ūpile ₃	σ ² ₃
(22)	5	50		Upile ₂₂₋₁	Upile ₂₂₋₂	Upile ₂₂₋₆	Ūpile ₂₂	σ ² ₂₂
(23)	5	60		Upile ₂₃₋₁	Upile ₂₃₋₂	Upile ₂₃₋₆	Ūpile ₂₃	σ ² ₂₃
(24)	5	70		Upile ₂₄₋₁	Upile ₂₄₋₂	Upile ₂₄₋₆	Ūpile ₂₄	σ ² ₂₄

Chaque réponse Upile_{i,j} correspond à un essai liant la combinaison i des facteurs contrôlés à la combinaison j des facteurs bruits. Pour chacune des lignes i (N°1 à 24), nous calculons les moyennes arithmétiques des Upile_{i,j} (Ūpile_i) et la variance associée à cette réponse moyenne σ²_i.

Le principal inconvénient des plans produits est le nombre élevé d'essais qu'ils nécessitent. Dans notre cas, le nombre de mesures nécessaires est égal à 24×6.

V.5.1.2 Rapport signal/bruit (S/B)

Le rapport signal/bruit (S/B), défini par Taguchi, est le rapport entre l'optimum de la valeur de la réponse et la dispersion de la réponse en fonction des facteurs bruits [Pil99], [Sou94]. Dans ses études, Taguchi n'utilise pas de modèle prédictif. Il choisit simplement d'utiliser les réponses en position et dispersion combinées par le rapport S/B. Les facteurs étant souvent confondus avec des interactions, Taguchi se contente des effets de chaque facteur pour déterminer la configuration optimale.

Le rapport (S/B) permet de déterminer la combinaison des facteurs contrôlés permettant de minimiser la perte engendrée par les facteurs bruits. Taguchi définit trois fonctions liées à la recherche d'une valeur optimale de la réponse en considérant les différentes stratégies expérimentales définies par la Figure V- 13.

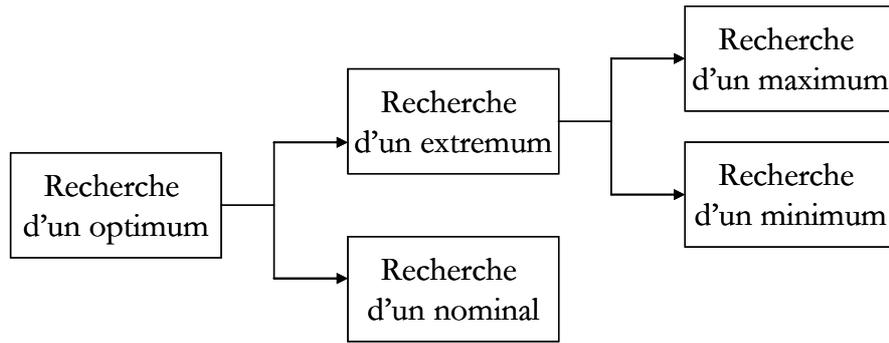


Figure V- 13 : Démarche permettant la recherche d'un optimum

Les trois rapports S/B (notés v_i) exprimés en décibels et définis par Taguchi sont :

- Dans le cas d'une recherche de nominal :

$$v_i = S/B_i = -10 \log \left(\frac{\sum \bar{y}_i^2}{\sigma_i^2} \right) \quad (\text{V. 16})$$

- Dans le cas d'une recherche d'un maximum :

$$v_i = S/B_i = -10 \log \left[\frac{1}{\bar{y}^2} \left(1 + 3 \frac{\sigma^2}{\bar{y}^2} \right) \right] \quad (\text{V. 17})$$

- Dans le cas d'une recherche d'un minimum :

$$v_i = S/B_i = -10 \log (\sigma^2 + \bar{y}^2) \quad (\text{V. 18})$$

Règle d'utilisation du rapport Signal/Bruit :

- Le but est de savoir si la variabilité observée dans les données est uniquement due au hasard ou s'il existe effectivement des différences significatives, dues au facteur bruit.
- La perte sera d'autant plus faible que le ratio S/B sera grand.

V.5.1.3 Application à l'étude de la robustesse de la PàC vis-à-vis de la durée de fonctionnement

L'objectif du plan produit est de trouver la combinaison des facteurs qui permet à la fois de maximiser la tension de pile à tout instant et de réduire sa dispersion en fonction des conditions. Le choix des facteurs doit donc aboutir à :

- Minimiser la variance de la réponse,
- Maximiser la réponse.

Le meilleur compromis relatif au choix des facteurs est donné par le ratio S/B.

Le rapport S/B est calculé par la formule adaptée au cas d'une recherche de maximum (V. 17). Le calcul des effets relatifs aux facteurs peut être établi soit en prenant pour réponse la variance, soit en choisissant le rapport S/B comme variable de sortie. Les résultats sont présentés en considérant le ratio S/B comme la réponse étudiée (Figure V- 14) :

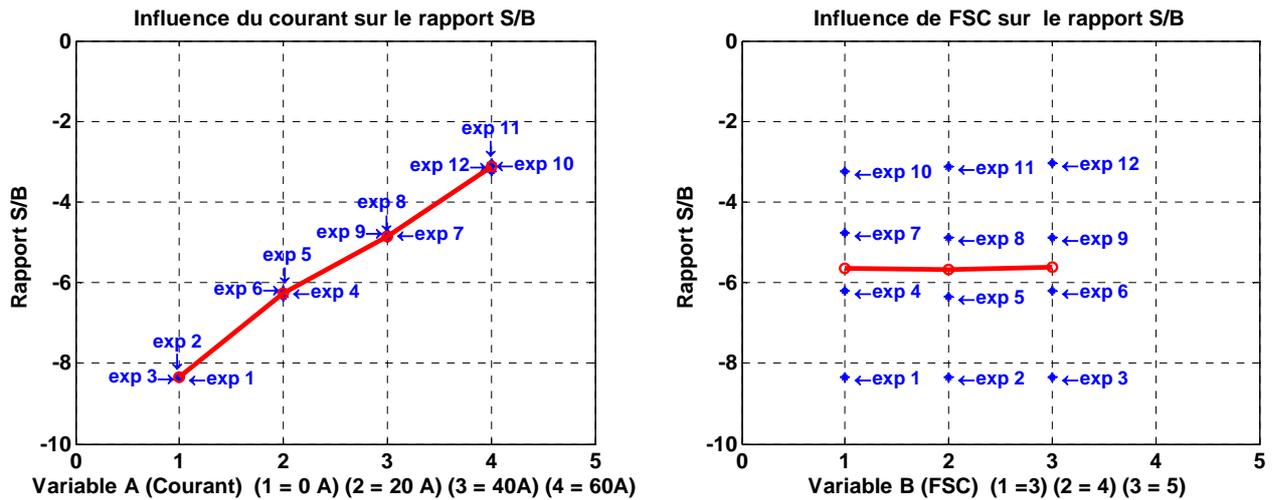


Figure V- 14 : Graphe des effets moyens du rapport S/B

La dépendance des performances de la pile en fonction du temps sera moins perçue pour un courant faible. Pour une augmentation de la tension de pile, et pour une réduction de l'effet du bruit (le temps), il vaut mieux fonctionner à un courant très faible (pas de surprise ici). Le choix de la surstœchiométrie cathode n'a pas d'impact visible sur le ratio S/B.

Le résultat du calcul de S/B peut être pris comme une simple information. En effet, par définition, nous « supportons » les effets des facteurs bruits sans pouvoir agir dessus. Cependant, l'optimisation du rapport S/B permet de jouer sur les interactions entre les facteurs bruits et les facteurs principaux afin de réduire l'influence des facteurs bruits.

Nous pouvons considérer que les analyses réalisées s'inscrivent dans le contexte d'une étude de fiabilité. La robustesse vis-à-vis du temps peut être recherchée conjointement à la robustesse face aux facteurs bruits [Pil97]. Dans ses travaux de thèse qui portent sur la conception de produits robustes et fiables, Sylvain Rochon propose de séparer les facteurs bruits des facteurs temps [Roc96]. Nous pouvons appliquer cette démarche au domaine qui nous intéresse en choisissant de réaliser trois études. La première met en œuvre le rapport Signal/Temps (S/T) où le bruit n'est rien d'autre que le facteur temps. La seconde utilise le rapport (S/B) et dans ce cas, le signal bruit correspond à la position des cellules au sein du stack. La troisième et dernière étude fait appel au rapport Signal/Bruit **global** S/(B+T) ; le bruit est à la fois constitué par le temps et par la position des cellules. En effet, si l'optimisation entre le ratio S/B et le ratio S/T donne lieu à des résultats contradictoires, la globalisation de l'optimisation (utilisation du ratio S/(B+T)) donnera la priorité au paramètre T ou B qui aura le plus de poids sur la réponse. Pour optimiser la fiabilité, il faut donc dissocier fiabilité et robustesse aux facteurs purement « bruits ».

Trois études préliminaires (non présentées ici) ont été menées en considérant les rapports S/B, S/T et S/(B+T). Les résultats obtenus pour ces trois études ont été les suivants :

- Dans le cas où le facteur bruit est le temps, la PàC apparaît comme étant plus robuste à courant faible.
- Dans le cas où le facteur bruit est relatif à la position de la cellule dans le stack, la PàC est plus robuste à courant fort et FSC faible.
- Dans le cas où le temps et la position de cellule sont considérés tous deux comme des bruits, la PàC est plus robuste à courant et FSC faibles.

Les résultats obtenus à partir des trois études réalisées montrent qu'il n'est pas possible de trouver directement de compromis par cette méthode. En effet, la robustesse face aux bruits est

parfois contradictoire avec la robustesse vis-à-vis du temps. L'optimum global trouvé dépendrait des poids relatifs qui auraient été donnés au temps et aux autres facteurs de bruit. L'optimisation globale par le ratio S/B pourrait être faite en mettant en œuvre une méthode de type désirabilité.

Pour résoudre le problème de manière quelque peu alternative, nous décidons par la suite d'utiliser la méthode des surfaces de réponse duale (soit, en anglais, « Dual Response Surfaces, DRS ») qui repose sur des études à la fois séparées et complémentaires de la réponse et de sa dispersion. Le choix de la méthode DRS nous a semblé avantageux dans la mesure où les surfaces de réponse doivent permettre ici de trouver visuellement des zones géométriques du plan courant – FSC correspondant à de « bons » compromis performances / variabilité.

V.5.2 APPLICATION DE LA METHODE DES SURFACES DE REPONSE DUALE (DRS)

V.5.2.1 Méthodologie DRS

En dépit des difficultés évoquées précédemment, l'approche de Taguchi et le recours au rapport S/B restent efficaces pour élaborer un produit robuste dans lequel les interactions liant les facteurs contrôlés sont supposées négligeables. Toutefois, cette technique d'optimisation ne permet pas au praticien d'acquérir d'informations tangibles sur les interactions liant les facteurs contrôlés, ni sur les interactions entre les facteurs contrôlés et les facteurs bruits. Les solutions de substitution mises en œuvre par Nair et al. (en 1992) ont permis d'aboutir à une meilleure connaissance du processus [Box78]. Dans ces travaux, l'analyse est accomplie à l'aide de modèles séparés pour la moyenne et la variance du processus étudié.

Nous reprenons la notation matricielle du modèle linéaire défini au chapitre II avec les vecteurs \mathbf{x} et \mathbf{z} qui représentent respectivement les facteurs contrôlés et les facteurs bruits :

$$y(\mathbf{x}, \mathbf{z}) = \hat{y}(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + \varepsilon \quad (\text{V. 19})$$

avec :

$\hat{y}(\mathbf{x}, \mathbf{z})$: le vecteur des réponses prédites en fonction des facteurs contrôlés et des bruits,
 $y(\mathbf{x}, \mathbf{z})$: le vecteur des réponses mesurées en fonction des facteurs contrôlés et des bruits,
 ε : le vecteur des erreurs.

Le modèle de la surface de réponse en fonction des facteurs \mathbf{x} et \mathbf{z} s'écrit sous la forme :

$$\hat{y}(\mathbf{x}, \mathbf{z}) = \hat{\beta}_0 + \mathbf{x}^t \hat{\beta} + \mathbf{x}^t \hat{\mathbf{B}} \mathbf{x} + \mathbf{z}^t \mathbf{c} + \mathbf{x}^t \hat{\Delta} \mathbf{z} \quad (\text{V. 20})$$

Avec :

n : le nombre de facteurs contrôlables,

m : le nombre de facteurs bruits,

$\hat{\beta}_0$: l'estimation de la moyenne des réponses,

$\hat{\beta}$: l'estimation des effets liés aux variables contrôlables,

$\hat{\mathbf{B}}$: la matrice ($n \times n$) des effets quadratiques et des interactions des facteurs contrôlés,

\mathbf{c} : l'estimation des effets des facteurs bruits,

$\hat{\Delta}$: la matrice ($n \times m$) de l'interaction type $\mathbf{x} \times \mathbf{z}$ (facteur contrôlé \times facteur bruit).

L'ajustement des paramètres du modèle adopté, et décrit par l'équation (V. 19), est réalisé avec la méthode des moindres carrés.

$$y(\mathbf{x}, \mathbf{z}) = \beta_0 + \mathbf{x}^t \boldsymbol{\beta} + \mathbf{x}^t \mathbf{B} \mathbf{x} + \mathbf{z}^t \boldsymbol{\gamma} + \mathbf{x}^t \boldsymbol{\Delta} \mathbf{z} + \varepsilon \quad (\text{V. 21})$$

$$\mathbf{x} = \begin{Bmatrix} x_1 \\ x_2 \\ x_3 \\ \vdots \\ \vdots \\ x_n \end{Bmatrix}, \boldsymbol{\beta} = \begin{Bmatrix} \beta_1 \\ \beta_2 \\ \beta_3 \\ \vdots \\ \vdots \\ \beta_n \end{Bmatrix}, \mathbf{z} = \begin{Bmatrix} z_1 \\ z_2 \\ z_3 \\ \vdots \\ \vdots \\ z_m \end{Bmatrix}, \boldsymbol{\gamma} = \begin{Bmatrix} \gamma_1 \\ \gamma_2 \\ \gamma_3 \\ \vdots \\ \vdots \\ \gamma_m \end{Bmatrix}, \boldsymbol{\Delta} = \begin{bmatrix} \delta_{11} & \delta_{12} & \cdots & \cdots & \delta_{1m} \\ \delta_{21} & \delta_{22} & & & \vdots \\ \vdots & \vdots & & & \vdots \\ \delta_{n1} & \delta_{n2} & \cdots & \cdots & \delta_{nm} \end{bmatrix} \quad (\text{V. 22})$$

Dans l'approche DRS, deux modèles empiriques sont habituellement établis pour décrire la moyenne et la variance de la réponse. Les facteurs bruits sont considérés comme étant des variables aléatoires ayant une moyenne égale à zéro et une variance σ_z^2 :

$$E(\mathbf{z}) = 0, \quad \text{Var}(\mathbf{z}) = \sigma_z^2 \mathbf{I}_m \quad (\text{V. 23})$$

$E(\mathbf{z})$: moyenne (ou espérance) de la variable aléatoire \mathbf{z} ,
 $\text{Var}(\mathbf{z})$: variance de \mathbf{z} ,
 σ_z : écart type de \mathbf{z} .

Le modèle de la surface de réponse de la moyenne est donné par l'équation (V. 23) :

$$E_z[y(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = \beta_0 + \mathbf{x}^t \boldsymbol{\beta} + \mathbf{x}^t \mathbf{B} \mathbf{x} \quad (\text{V. 24})$$

L'équation (V. 30) représentera la surface de réponse de la variance du processus. Le coefficient σ_z est l'écart type du facteur bruit et σ^2 est la variance globale de la réponse.

$$\text{Var}_z[y(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = \text{Var}_z \left\{ \left[\boldsymbol{\gamma}^t + \mathbf{x}^t \boldsymbol{\Delta} \right] \mathbf{z} \right\} + \sigma^2 \quad (\text{V. 25})$$

$$\text{avec : } \sigma^2 = \frac{\text{SCE}}{N - p} \quad (\text{V. 26})$$

$$\text{Or : } \quad \text{Var}_z \left[\mathbf{a}^t \mathbf{z} \right] = \mathbf{a}^t [\text{Var}(\mathbf{z})] \mathbf{a} \quad (\text{V. 27})$$

$$\text{Donc : } \quad \text{Var}_z[y(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = \sigma_z^2 \cdot \left[\boldsymbol{\gamma}^t + \mathbf{x}^t \boldsymbol{\Delta} \right] \cdot \left[\boldsymbol{\gamma}^t + \mathbf{x}^t \boldsymbol{\Delta} \right]^t + \sigma^2 \quad (\text{V. 28})$$

Ces deux relations empiriques (V.24 et V.28) sont employées simultanément pour chercher l'optimum qui correspond à la fois à la réponse la plus élevée et à la variance moindre sur le processus. Dans le prochain paragraphe, la méthodologie DRS est appliquée à l'analyse de l'essai de vieillissement de la PaC, tout d'abord en considérant le temps comme unique facteur de bruit.

V.5.2.2 Détermination des conditions de fonctionnement robuste en fonction du temps de vieillissement

L'originalité de la démarche réside donc dans l'emploi simultané de la caractéristique de la variance (ou de l'écart type) et de la moyenne pour former un système dual de réponse.

La méthode DRS reprend la même démarche méthodologique que celle adoptée lors de la construction de tout PE, et notamment celle des plans produits de Taguchi qui consiste à croiser deux plans, un pour les facteurs contrôlés (le plan principal) et un second pour les facteurs bruits (le plan bruit). Le plan produit consistera à répéter les expériences du plan principal pour chaque configuration des paramètres bruits apparaissant dans le plan produit. Cette présentation originale permet de réaliser la double optimisation qui permettra d'obtenir des systèmes fonctionnant de façon optimale, même dans un environnement bruité. Dans notre étude, la réponse représente la tension de sortie de la PàC (U_{pile}). Les facteurs contrôlés sont le courant de charge (I) et le taux de surstoéchiométrie d'air (FSC). Ces deux facteurs forment un plan principal de dimensions (8 × 3). Le facteur bruit est le temps de vieillissement (t). Les niveaux adoptés pour les facteurs sont récapitulés dans le Tableau V- 8. Le plan produit résultant est résumé par le Tableau V- 9.

Tableau V- 8 : Niveaux des facteurs

Facteurs	Niveaux			
	Mini.	Intermédiaire	Maxi.	Niveaux
I	0A	Pas de 10A	70A	8
FSC	3	4	5	3
t	0h	Instants de caractérisation	1000h	16

Tableau V- 9 : Plan produit étudié avec pour facteur bruit : le temps de vieillissement

Plan principal, Facteurs contrôlables : x			Plan produit, facteur bruit : z			
			n°	(1)	(2)	(16)
n°	FSC	I	t	H0	H101	H995
(1)	3	0		U _{pile} ₁₋₁	U _{pile} ₁₋₂	U _{pile} ₁₋₁₆
(2)	3	10		U _{pile} ₂₋₁	U _{pile} ₂₋₂	U _{pile} ₂₋₁₆
(3)	3	20		U _{pile} ₃₋₁	U _{pile} ₃₋₂	U _{pile} ₃₋₁₆
(22)	5	50		U _{pile} ₂₂₋₁	U _{pile} ₂₂₋₂	U _{pile} ₂₂₋₁₆
(23)	5	60		U _{pile} ₂₃₋₁	U _{pile} ₂₃₋₂	U _{pile} ₂₃₋₁₆
(24)	5	70		U _{pile} ₂₄₋₁	U _{pile} ₂₄₋₂	U _{pile} ₂₄₋₁₆

1. Modélisation

Le modèle sous-jacent destiné à la construction d'un PE relatif à l'analyse par DRS peut être présenté sous la forme générale (V. 18). Dans le cas présent, la tension de pile s'exprime comme suit :

$$\begin{aligned}
 U_{pile} = & \beta_0 + \beta_1 \cdot I + \beta_2 \cdot FSC + \beta_{11} \cdot I^2 + \beta_{22} \cdot FSC^2 \\
 & + \beta_{12} \cdot I \cdot FSC + \gamma \cdot t + \delta_1 \cdot I \cdot t + \delta_2 \cdot FSC \cdot t + \varepsilon
 \end{aligned}
 \tag{V. 29}$$

Les paramètres du modèle sont calculés en utilisant une régression (méthode des moindres carrés) permettant d'obtenir une estimation non biaisée des coefficients par minimisation de la somme des carrés des résidus.

$$\begin{cases} \beta_0 = 1.7896 \\ \beta = [\beta_1 \quad \beta_2]^t = [-0.6202 \quad 0.0292]^t \\ B = \begin{bmatrix} \beta_{11} & \beta_{12}/2 \\ \beta_{12}/2 & \beta_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0.3250 & 0.0443/2 \\ 0.0443/2 & -0.0123 \end{bmatrix} \\ \gamma = -0.1199 \\ \Delta = [\delta_1 \quad \delta_2]^t = [-0.0657 \quad 0.0617]^t \end{cases} \quad (\text{V. 30})$$

$$\begin{aligned} \hat{U}_{\text{pile}} = & 1.7896 - 0.6202 \cdot I + 0.0292 \cdot \text{FSC} + 0.3250 \cdot I^2 - 0.0123 \cdot \text{FSC}^2 \\ & + 0.0443 \cdot I \cdot \text{FSC} - 0.1199 \cdot t - 0.0657 \cdot I \cdot t + 0.0617 \cdot \text{FSC} \cdot t \end{aligned} \quad (\text{V. 31})$$

L'expression générale du modèle de la moyenne $E_{z=t}$ est donnée par :

$$\begin{aligned} E_{z=t}[\text{Upile}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] &= \beta_0 + \beta_1 \cdot I + \beta_2 \cdot \text{FSC} + \beta_{11} \cdot I^2 + \beta_{22} \cdot \text{FSC}^2 \\ &+ \beta_{12} \cdot I \cdot \text{FSC} \\ E_{z=t}[\text{Upile}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] &= 1.7896 - 0.6202 \cdot I + 0.0292 \cdot \text{FSC} + 0.3250 \cdot I^2 \\ &- 0.0123 \cdot \text{FSC}^2 + 0.0443 \cdot I \cdot \text{FSC} \end{aligned} \quad (\text{V. 32})$$

Il est alors possible de tracer la surface de réponse relative à la moyenne du processus :

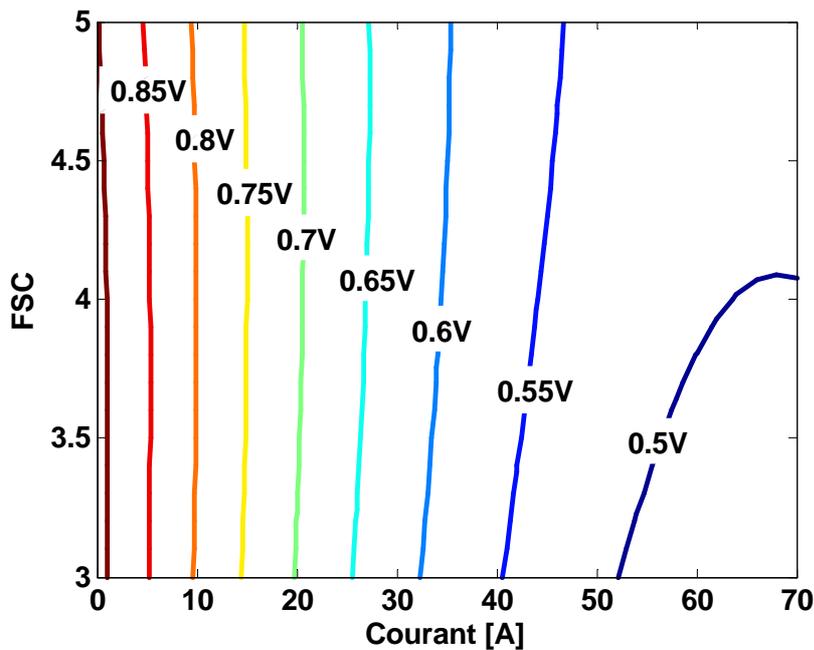


Figure V- 15 : Surface de réponse relative à la moyenne du processus rapporté à une cellule

L'équation de la surface de réponse liée à la variance du processus peut être écrite comme suit :

$$\begin{aligned} \text{Var}_{z=t}[\text{Upile}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] &= \sigma_{z=t}^2 \cdot (\gamma + \delta_1 \cdot I + \delta_2 \cdot \text{FSC})^2 + \sigma^2 \\ \text{Var}_{z=t}[\text{Upile}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] &= \sigma_{z=t}^2 \cdot (-0.1199 - 0.0657 \cdot I + 0.0617 \cdot \text{FSC})^2 + \sigma^2 \end{aligned} \quad (\text{V. 33})$$

avec $\sigma_{z=t}^2 = 0.3401$ et $\sigma^2 = 0.0064$

Cette relation rend possible le tracé de la surface de réponse relative à la variance du processus :

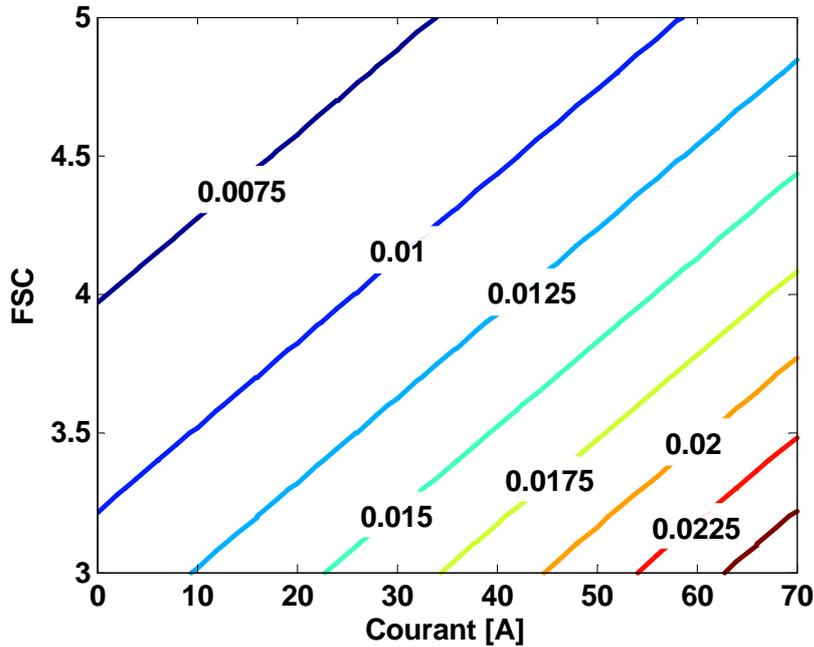


Figure V- 16 : Surface de réponse relative à la variance du processus

Les courbes iso-réponses de la moyenne et de la variance sont superposées afin d'obtenir la surface de réponse duale liée à la tension de pile (Figure V- 17). La courbe iso-réponse de la moyenne montre que la valeur de la tension de pile est plus élevée pour FSC = 5, aux plus fortes valeurs de courant ($I > 30\text{A}$). Le facteur de surstoéchiométrie cathode n'a pas d'impact significatif sur la tension pour des courants inférieurs à 30A. La courbe iso-réponse de la variance révèle que la variabilité de la tension de pile en fonction du temps de vieillissement est minimale pour des valeurs de courants basses et FSC = 5.

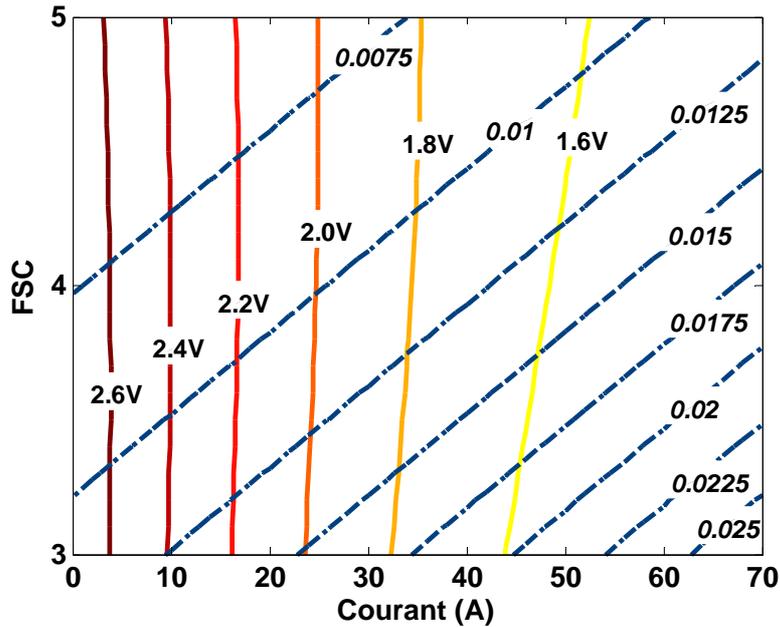


Figure V- 17 : Surface de réponse duale pour la tension de pile

2. Optimisation

L'optimisation du fonctionnement de la PàC peut être faite en considérant des valeurs données de courant électrique délivré. Dans ce cas, les valeurs optimales de FSC et du courant de charge sont choisies d'une part pour atteindre une puissance élevée et d'autre part pour réduire l'impact de la durée de vieillissement sur les performances de la pile (variance minimale, robustesse élevée). La Figure V- 18 fait apparaître la surface de réponse duale relative à la puissance d'une cellule « moyenne ». Par exemple, pour une valeur cible de puissance de cellule égale à 30W, il vaut mieux fonctionner à un courant de 57A, ceci afin d'obtenir un rendement de tension le plus élevé possible. Pour cette valeur de courant, FSC = 5 réduira l'impact du temps de vieillissement sur la variabilité de la tension de pile.

La variance du processus relative à la puissance électrique de la cellule moyenne définie est calculée à partir de variance de la tension de pile :

$$\text{Var}_{z=t} [I \times U_{\text{pile}} / 3] = I^2 \times \text{Var}_{z=t} [U_{\text{pile}}] / 9 \quad (\text{V. 34})$$

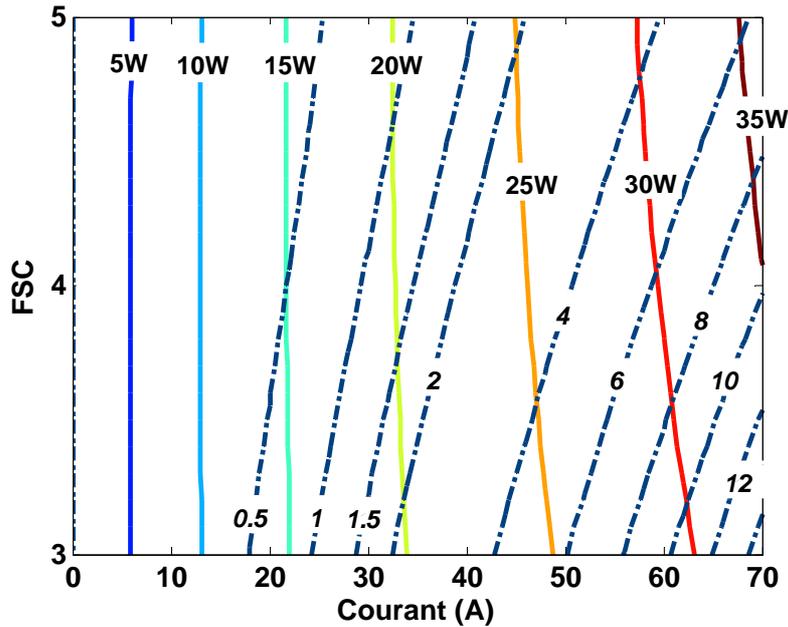


Figure V- 18 : La surface de réponse duale relative à la puissance d'une cellule moyenne

V.5.2.3 Détermination des conditions de fonctionnement robuste en fonction de la position de la cellule dans le stack

L'étude précédente montre qu'il est envisageable et possible de considérer la durée (ou le temps) de vieillissement comme un facteur de bruit. La position de la cellule au sein du stack peut l'être également, avec l'objectif d'éviter des déviations trop grandes des tensions de cellules liées par exemple à l'état des coeurs de pile (noyage ou assèchement). Le but étant de réduire la variabilité entre les trois tensions de cellules, d'obtenir ainsi un fonctionnement plus stable et robuste de la PàC. Dans cette optique, un nouveau plan produit est mis en œuvre. Les facteurs contrôlés sont les suivants : courant de charge, FSC et temps de vieillissement. Le facteur bruit est représenté par la position des cellules dans la pile (n). Les niveaux adoptés pour les facteurs apparaissent au sein du Tableau V- 10. La réponse Ucell fait référence à la tension d'une cellule « moyenne ».

Tableau V- 10 : Plan produit où le facteur bruit correspond à la position de cellule dans le stack

Plan principal, Facteur contrôlable : x				Plan bruit, facteur bruit : z			
				n°	(1)	(2)	(3)
N°	I	FSC	t	Cellule	1	2	3
(1)	0	3	0		Ucell ₁₋₁	Ucell ₁₋₂	Ucell ₁₋₃
(2)	0	3	101		Ucell ₂₋₁	Ucell ₂₋₂	Ucell ₂₋₃
(3)	0	3	190		Ucell ₃₋₁	Ucell ₃₋₂	Ucell ₃₋₃
(382)	70	5	855		Ucell ₃₈₂₋₁	Ucell ₃₈₂₋₂	Ucell ₃₈₂₋₃
(383)	70	5	923		Ucell ₃₈₃₋₁	Ucell ₃₈₃₋₂	Ucell ₃₈₃₋₃
(384)	70	5	995		Ucell ₃₈₄₋₁	Ucell ₃₈₄₋₂	Ucell ₃₈₄₋₃

Le modèle correspondant à la tension de cellule moyenne U_{cell} peut être exprimé par l'équation (V. 35) :

$$\begin{aligned} U_{cell} = & \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I + \beta_{11} \cdot t^2 + \beta_{22} \cdot FSC^2 + \beta_{33} \cdot I^2 \\ & + \beta_{12} \cdot t \cdot FSC + \beta_{13} \cdot t \cdot I + \beta_{23} \cdot FSC \cdot I + \gamma \cdot n + \delta_1 \cdot t \cdot n \\ & + \delta_2 \cdot FSC \cdot n + \delta_3 \cdot I \cdot n + \varepsilon \end{aligned} \quad (V. 35)$$

avec :

$$\left\{ \begin{aligned} \beta_0 &= 0.6054 \\ \beta &= [\beta_1 \quad \beta_2 \quad \beta_3]^t = [-0.0365 \quad 0.0089 \quad -0.1740]^t \\ B &= \begin{bmatrix} \beta_{11} & \beta_{12}/2 & \beta_{13}/2 \\ \beta_{12}/2 & \beta_{22} & \beta_{23}/2 \\ \beta_{13}/2 & \beta_{23}/2 & \beta_{33} \end{bmatrix} \\ B &= \begin{bmatrix} -0.02 & 0.0214/2 & -0.0271/2 \\ 0.0214/2 & -0.0041 & 0.0169/2 \\ -0.0271/2 & 0.0169/2 & 0.0689 \end{bmatrix} \\ \gamma &= -0.0034 \\ \Delta &= [\delta_1 \quad \delta_2 \quad \delta_3]^t = [0.0193 \quad -0.0092 \quad 0.0164]^t \end{aligned} \right. \quad (V. 36)$$

L'expression du modèle général de la moyenne $E_{z=n}$ est établie utilisant la relation (V. 24) par :

$$\begin{aligned} E_{z=n}[U_{cell}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = & \beta_0 + \beta_1 \cdot t + \beta_2 \cdot FSC + \beta_3 \cdot I + \beta_{11} \cdot t^2 + \beta_{22} \cdot FSC^2 \\ & + \beta_{33} \cdot I^2 + \beta_{12} \cdot t \cdot FSC + \beta_{13} \cdot t \cdot I + \beta_{23} \cdot FSC \cdot I \end{aligned} \quad (V. 37)$$

L'équation générale de la variance est écrite comme suit, en utilisant la relation (V. 28) :

$$\text{Var}_{z=n}[U_{cell}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = \sigma_{z=n}^2 \cdot (\gamma + \delta_1 \cdot t + \delta_2 \cdot FSC + \delta_3 \cdot I)^2 + \sigma^2 \quad (V. 38)$$

avec :

$$\left\{ \begin{aligned} \sigma_{z=n}^2 &= 0.6667 \\ \sigma^2 &= 4.9212 \cdot 10^{-4} \end{aligned} \right. \quad (V. 39)$$

Les surfaces de réponse liées à la moyenne et à la variance sont représentées au moyen de courbes iso-réponses et superposées. Les courbes correspondantes peuvent être tracées dans le plan Courant de charge – FSC pour différents instants de caractérisation. La Figure V-19 présente les surfaces de réponses relatives à la moyenne et à la variance de la puissance électrique d'une cellule moyenne pour deux instants de caractérisation différents : Hinit et H995 correspondant respectivement au début et à la fin de l'essai d'endurance. Au début de l'essai (à Hinit), le facteur FSC n'a pas une grande influence sur le rendement de la pile : les courbes de niveaux associées au modèle de la moyenne calculée pour la puissance sont presque verticales. La

variance est minimale pour des valeurs de courants faibles. Pour une valeur cible de puissance de cellule « moyenne » égale à 30W, un courant proche de 53A et une valeur de FSC faible permettent de réduire la disparité entre les tensions de cellules. À la fin de l'essai (à H995), la Figure V- 19 montre que la puissance électrique de 30W ne peut seulement être atteinte qu'avec FSC = 5. Pour des puissances inférieures, ce taux de surstoéchiométrie cathode réduit au minimum la variabilité entre les différents comportements de cellules (probablement parce qu'une forte FSC participe à une meilleure évacuation de l'eau liquide dans la pile). Toutes ces observations, faites pour les instants de caractérisations Hinit et H995, suggèrent que le taux de surstoéchiométrie cathode pourrait être adapté en fonction du déroulement de l'essai de vieillissement, ce qui induirait alors une évolution de la commande du compresseur d'air au cours du temps.

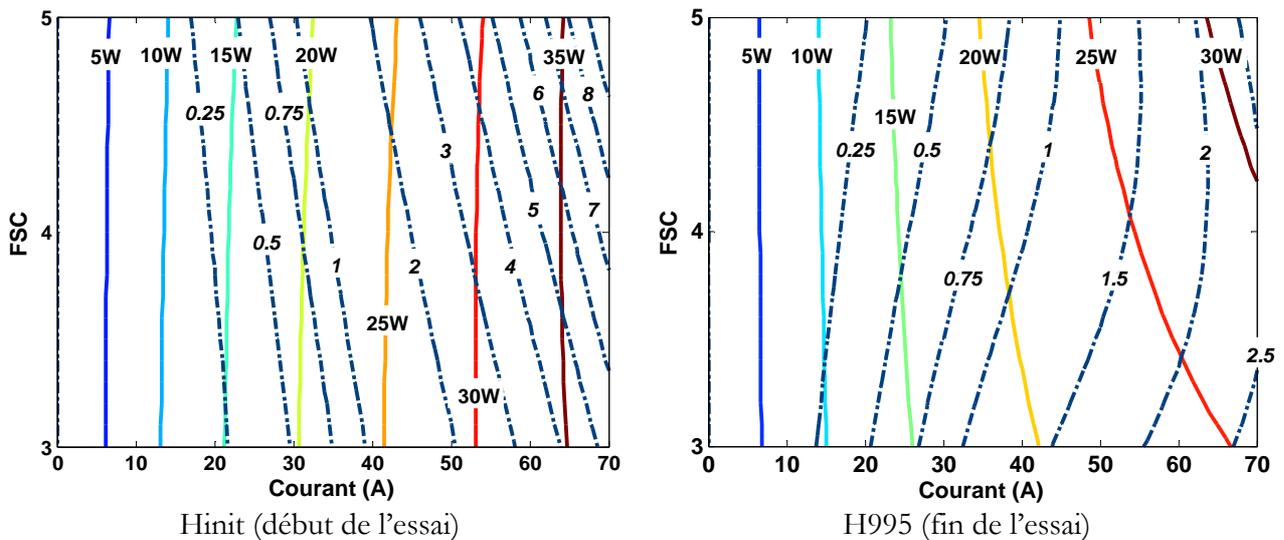


Figure V- 19 : Surfaces de réponse duales pour différents instants de caractérisation

V.5.2.4 Détermination des conditions de fonctionnement robuste en fonction du temps de vieillissement et de la position des cellules au sein du stack

Les facteurs contrôlables sont le courant de charge et FSC. Le plan bruit est constitué du temps de vieillissement (t) et de la position des cellules dans la pile (n). Les niveaux retenus pour les facteurs sont les mêmes que précédemment (Tableau V. 8).

Tableau V- 11 : Plan produit avec comme facteurs bruits : le temps de vieillissement et la position de la cellule dans le stack

Plan principal, Facteur contrôlable : \mathbf{x}			Plan bruit, deux facteurs bruits : \mathbf{z}			
			n°	(1)	(2)	(48)
			t	H0	H101	H995
			Cellules	1	1	3
N°	FSC	I				
(1)	3	0		Ucell ₁₋₁	Ucell ₁₋₂	Ucell ₁₋₄₈
(2)	3	10		Ucell ₂₋₁	Ucell ₂₋₂	Ucell ₂₋₄₈
(3)	3	20		Ucell ₃₋₁	Ucell ₃₋₂	Ucell ₃₋₄₈
(22)	5	50		Ucell ₂₂₋₁	Ucell ₂₂₋₂	Ucell ₂₂₋₄₈
(23)	5	60		Ucell ₂₃₋₁	Ucell ₂₃₋₂	Ucell ₂₃₋₄₈
(24)	5	70		Ucell ₂₄₋₁	Ucell ₂₄₋₂	Ucell ₂₄₋₄₈

Le modèle relatif à la tension de cellule moyenne Ucell peut être exprimé par l'équation (V. 40) :

$$\begin{aligned}
 U_{\text{cell}} = & \beta_0 + \beta_1 \cdot I + \beta_2 \cdot \text{FSC} + \beta_{11} \cdot I^2 + \beta_{22} \cdot \text{FSC}^2 \\
 & + \beta_{12} \cdot I \cdot \text{FSC} + \gamma_t \cdot t + \gamma_n \cdot n + \delta_{t1} \cdot I \cdot t \\
 & + \delta_{t2} \cdot \text{FSC} \cdot t + \delta_{n1} \cdot I \cdot n + \delta_{n2} \cdot \text{FSC} \cdot n + \varepsilon
 \end{aligned} \tag{V. 40}$$

avec :

$$\left\{ \begin{aligned}
 & \beta_0 = 0.5920 \\
 & \beta = [\beta_1 \quad \beta_2]^t \\
 & \beta = [-0.1978 \quad 0.0095]^t \\
 & B = \begin{bmatrix} \beta_{11} & \beta_{12}/2 \\ \beta_{12}/2 & \beta_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0.1043 & 0.0146/2 \\ 0.0146/2 & -0.0038 \end{bmatrix} \\
 & \gamma = [\gamma_t \quad \gamma_n]^t = [-0.0384 \quad -0.0027]^t \\
 & \Delta = \begin{bmatrix} \delta_{t1} & \delta_{n1} \\ \delta_{t2} & \delta_{n2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -0.0190 & -0.0185 \\ 0.0203 & -0.0089 \end{bmatrix}
 \end{aligned} \right. \tag{V. 41}$$

L'expression du modèle général de la moyenne $E_{z=(t,n)}$ est donnée par :

$$\begin{aligned}
 E_{z=(t,n)}[U_{\text{cell}}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = & \beta_0 + \beta_1 \cdot I + \beta_2 \cdot \text{FSC} + \beta_{11} \cdot I^2 + \beta_{22} \cdot \text{FSC}^2 \\
 & + \beta_{12} \cdot I \cdot \text{FSC}
 \end{aligned} \tag{V. 42}$$

L'équation générale de la variance est écrite comme suit :

$$\begin{aligned}
 \text{Var}_{z=(t,n)}[U_{\text{cell}}(\mathbf{x}, \mathbf{z})] = & \sigma_{zt}^2 \cdot (\gamma_t + \delta_{t1} \cdot I + \delta_{t2} \cdot \text{FSC})^2 \\
 & + \sigma_{zn}^2 \cdot (\gamma_n + \delta_{n1} \cdot I + \delta_{n2} \cdot \text{FSC})^2 + \sigma^2
 \end{aligned} \tag{V. 43}$$

avec :

$$\begin{cases} \sigma_{zt}^2 = 0.3395 & \sigma_{tn}^2 = 0.6672 \\ \sigma^2 = 8.1674 \cdot 10^{-4} \end{cases} \quad (\text{V. 44})$$

La surface duale résultante apparaît sur la Figure V- 20.

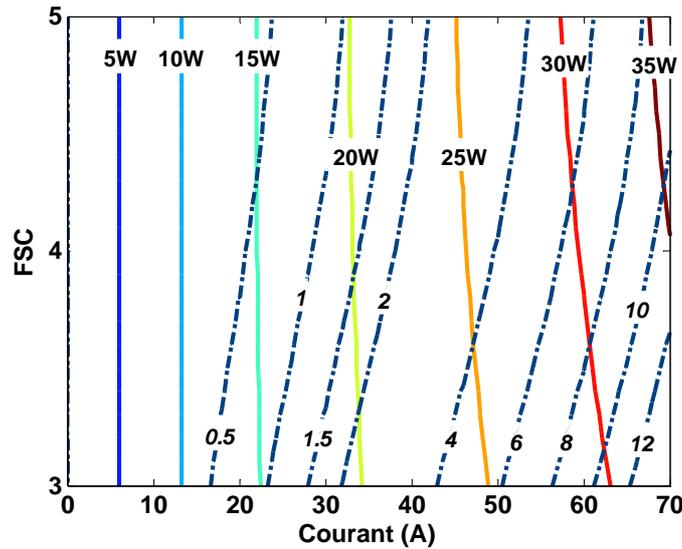


Figure V- 20 : Surface duale pour la puissance d'une cellule moyenne

Pour une puissance électrique cible de 30W (puissance ramenée à une cellule moyenne), FSC = 5 peut être choisi. Ainsi, d'une part le rendement électrique de la cellule moyenne sera élevé puisqu'une valeur de courant égale à 58A seulement sera nécessaire pour atteindre la puissance considérée. D'autre part, la variance due au temps de vieillissement et à la position des cellules sera réduite. Évidemment, un fort FSC implique une consommation plus élevée au niveau du compresseur alimentant la pile en air.

V.6 CONCLUSION DU CHAPITRE V

Pour réaliser une analyse de résultats issus d'un essai de vieillissement d'une PàC PEM 100W dotée de trois cellules et ayant fonctionné en régime stationnaire sur 1000h, nous avons eu recours à la méthode des surfaces de réponses (MSR). Celle-ci constitue en quelque sorte le deuxième volet de la méthodologie des plans d'expériences, le premier volet correspondant à la technique du criblage. Dans l'approche MSR, des modèles polynomiaux du second degré sont généralement adoptés. Leurs coefficients sont estimés à partir des résultats d'essais et des approximations du comportement du système étudié sont ainsi fournies. La prise en compte du vecteur des résidus constitue alors le point central pour la détermination de la qualité des modèles déduits des plans d'expériences. Dans nos travaux, nous avons mis en œuvre de tels modèles puis employé des représentations par surfaces de réponses et iso-réponses relatives à la tension de la pile étudiée. Une méthode particulière a également été mise en œuvre pour améliorer localement

la qualité de l'ajustement du modèle aux données collectées pendant les premiers instants de caractérisation. La démarche générale adoptée a permis de déterminer les conditions de fonctionnement (niveaux du courant de charge, du facteur de surstoechiométrie cathode) mettant en évidence le vieillissement de la pile et la dégradation de ses performances. La MSR permet la recherche d'un optimum dans le domaine expérimental considéré ; elle consiste à rechercher une combinaison des facteurs permettant de satisfaire au mieux aux exigences exprimées en terme de réponse optimale. Dans notre cas, les résultats de l'optimisation réalisée ont notamment mis en évidence la possibilité de fonctionner à des surstoechiométries faibles pendant les premières heures de fonctionnement de la PàC. Après 200h voire 300h, en fonction de la valeur du courant, les rendements de tension les plus élevés ne sont plus atteints que pour des fortes valeurs de FSC (égales à cinq).

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons étudié plus particulièrement la robustesse de la PàC vis-à-vis du temps et de ses conditions opératoires durant l'essai d'endurance. Des conditions de fonctionnement optimales ont été déterminées pour obtenir d'une part un rendement électrique le plus élevé possible, et d'autre part une variabilité en fonction du temps et au niveau des tensions de cellules la plus faible possible, ceci de manière à aboutir à une fiabilité potentiellement plus grande (réduction de l'impact du vieillissement sur les performances et diminution de l'occurrence des noyages ou des points chauds par exemple). L'approche des surfaces de réponses duales (DRS) a été appliquée pour estimer les rôles respectifs des facteurs courant, FSC, durée du vieillissement et position des cellules dans la pile sur le niveau de la tension du stack.

D'une manière générale, le travail présenté dans ce chapitre a montré que la MSR est un moyen approprié pour la caractérisation, l'analyse et l'amélioration d'un système complexe tel qu'une PàC.

