

## Suivi du vieillissement de système pile à combustible et batteries Li-ion en utilisant l'entropie de Shannon

Elodie Pahon, Daniel Hissel, Samir Jemei, Nadia Yousfi Steiner, Philippe

Mocoteguy

### ► To cite this version:

Elodie Pahon, Daniel Hissel, Samir Jemei, Nadia Yousfi Steiner, Philippe Mocoteguy. Suivi du vieillissement de système pile à combustible et batteries Li-ion en utilisant l'entropie de Shannon. Symposium de Génie Electrique, Université de Lorraine [UL], Jul 2018, Nancy, France. hal-02981915

## HAL Id: hal-02981915 https://hal.science/hal-02981915v1

Submitted on 28 Oct 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Suivi du vieillissement de système pile à combustible et batteries Li-ion en utilisant l'entropie de Shannon

E. Pahon<sup>1,2</sup>, D. Hissel<sup>1,2</sup>, S. Jemei<sup>1,2</sup>, N. Yousfi-Steiner<sup>1,2,3</sup>, P. Moçotéguy<sup>4</sup>

<sup>1</sup> FEMTO-ST, CNRS, Univ. Bourgogne Franche-Comte, rue Thierry Mieg, F-90010 Belfort Cedex, France

<sup>2</sup> FCLAB, CNRS, Univ. Bourgogne Franche-Comte, rue Thierry Mieg, F-90010 Belfort Cedex, France

<sup>3</sup> LABEX ACTION, Univ. Bourgogne Franche-Comte, rue Thierry Mieg, F-90010 Belfort Cedex, France

<sup>4</sup> EIFER, European Institute for Energy Research, Emmy-Noether Strasse 11, 76131 Karlsruhe, Germany

**RESUME** – Le vieillissement des systèmes électrochimiques peut être de différent type. Il existe le "vieillissement calendaire" qui intervient lorsque la batterie ou la pile à combustible est au repos (stockage) et le vieillissement « en usage » ou « en cyclage ». Une approche innovante pour analyser le vieillissement « en usage » de sources électrochimiques est proposée : l'entropie de Shannon. Au préalable, la transformée en ondelettes est utilisée pour filtrer le signal afin de suivre l'évolution de la dégradation du système au cours du temps. L'intérêt est d'être capable d'agir sur les paramètres de contrôle du système afin d'en corriger la dégradation ou de détecter l'apparition d'un défaut, en conditions de fonctionnement rées.

Mots-clés—Pile à combustible, batteries, entropie de Shannon, transformée en ondelettes, vieillissement

#### 1. INTRODUCTION

En vue d'augmenter la durée de vie des piles à combustible, des méthodes de diagnostic, de pronostic et de contrôle tolérant aux défauts sont mises en œuvre. Celles-ci doivent respectivement, détecter une défaillance aussi rapidement que possible afin d'éviter une dégradation irréversible du système ; prédire la durée de vie résiduelle en fonction d'un seuil correspondant à une perte de performances en dessous de laquelle le système est considéré comme inutilisable ; agir sur le contrôle du système pour compenser un défaut et éventuellement maintenir un fonctionnement en mode dégradé.

Kim et al. [1] utilisent la transformée en ondelettes discrète pour déterminer l'état de santé de batteries lithium-ion Samsung SDI 18650. Ils utilisent l'ondelette de Daubechies d'ordre 3 (db3) avec cinq niveaux de décomposition pour étudier le vieillissement à 25°C. L'écart-type sur les signaux d'approximation et de détail (A5 et D5) sont calculés et contribuent à l'établissement de l'état de santé de la batterie. Y. Zhou [2], utilise l'approche « Relevance vector machine » pour faire du pronostic sur une batterie Li-ion et estimer sa durée de vie résiduelle (RUL). Dans [3], la transformée par paquets d'ondelettes, qui est une variante de la transformée en ondelettes, est utilisée. A chaque niveau de décomposition, le signal d'approximation et le signal de détail sont décomposés. L'extraction des coefficients d'ondelettes est suivie d'une phase d'identification du défaut et d'une phase de classification. La méthode est dédiée au diagnostic de piles à combustible pour la détection d'un défaut de noyage. Dans [4], la transformée en ondelettes est appliquée au signal de tension. Combinée à l'étude de l'énergie et de l'entropie de Shannon, l'approche permet la détection d'un état de sur-stœchiométrie cathodique dans une pile à combustible.

Ce papier propose une approche innovante basée signal qui permet de suivre l'état de santé d'un système électrochimique

(pile à combustible à membrane échangeuse de protons et batterie Lithium-ion). L'approche repose sur l'entropie de Shannon qui est généralement utilisée pour déterminer la quantité d'information contenue ou délivrée par un signal.

L'analyse de l'entropie est assez largement utilisée dans le milieu médical pour éliminer le bruit des signaux tels qu'encéphalogrammes ou électroencéphalogrammes pour une meilleure détection de tumeurs ou autres pathologies [5-7]. L'approche par ondelettes permet le diagnostic de moteurs électriques [8-10], la gestion d'énergie [11-13] et les réseaux électriques [14-16].

L'approche repose sur l'analyse de l'entropie du signal de tension aux bornes de la source électrochimique puisqu'elle est facilement accessible, même sur un système embarqué. Ce choix permet d'effectuer la mesure de façon non intrusive et sans surcoût (pas de capteur additionnel).

En premier lieu, l'évolution de la tension est mesurée en continu au cours d'essais de longue durée, constituant la base de données. Le signal est ensuite échantillonné pour permettre de tester l'algorithme. Le cumul de tous les échantillons correspond à l'évolution de l'état de santé du dispositif au cours du temps. Le premier échantillon est défini comme l'état de santé initial (état de référence) et tous les autres sont évalués en fonction de celui-ci. Charge ensuite à la méthode basée sur l'entropie de définir si le système se dégrade et à quelle vitesse.

Pour cela, la transformée en ondelettes filtre le signal de tension afin de séparer les parties hautes fréquences et basses fréquences et de se focaliser sur l'étude du contenu des signaux haute fréquence qui contiennent plus d'informations. La transformée en ondelettes a pour principal avantage de conserver les informations de temps et de fréquence tandis que l'entropie permet de visualiser la variation de la quantité d'information contenue dans le signal et donc de relever la possibilité d'une défaillance selon l'ampleur de la variation.

L'article est organisé de la façon suivante. Les caractéristiques de la pile à combustible utilisée, les conditions opératoires et les protocoles des tests, de vieillissement, sont décrits dans la section 2. La section 3 décrit la méthode basée signal utilisée et fournit des informations quant au choix de l'ondelette sélectionnée. Les résultats obtenus en utilisant l'entropie sont présentés dans la section 4. La partie 5 conclut cet article.

#### 2. MOYENS EXPERIMENTAUX

Les essais pile à combustible ont été réalisés sur un banc de tests de 10 kW au sein de la fédération de recherche FCLAB. Le synoptique et sa légende sont donnés en figure 1 et tableau 1. La

fréquence d'acquisition des mesures de tensions, de courants, et des températures est de 1 Hz.



Fig. 1 : Synoptique du banc de tests 10 kW

Tableau 1 : Tableau de correspondances des capteurs situés sur le banc d'essais 10 kW

Description	Numéro du capteur
Courant (I)	1
Tension du stack (V)	2
Tensions de cellules (Vn)	2
Température du stack (Teauout)	6
Température d'entrée (TH2in) et de sortie (TH2out) de l'hydrogène	3 – 7
Température d'entrée (TAirin) et de sortie (TAirout) de l'air	4 - 8
Humidité relative de l'hydrogène en entrée (HRH2in) et en sortie (HRH2out)	3 – 7
Humidité relative de l'air en entrée (HRAirin) et en sortie (HRAirout)	4 - 8
Pression de l'H2 en entrée (PH2in) et en sortie (PH2out)	3 – 7
Pression de l'Air en entrée (PAirin) et en sortie (PAirout)	4 - 8
Différence de pression entre l'anode et la cathode ( $\Delta P$ )	3-4
Débit d'H2 entrant (dH2in)	3
Débit d'Air entrant (dAirin)	4
Débit d'eau du circuit de refroidissement (dEau)	5

Une pile à combustible de type PEM de 5 cellules ayant une surface active 100 cm<sup>2</sup> a été vieillie pendant 1800 heures dans les conditions nominales de fonctionnement, données par le fournisseur (cf. tableau 2), afin de maximiser la durée du test avant d'atteindre le seuil limite de dégradation défini par le département de l'énergie américain (US DoE) comme étant 10% de pertes de puissance [17]. Dans notre cas, un seuil de tension limite est défini, selon les préconisations d'usage du fournisseur, à 0.4 V/cellule.

La méthodologie a également été appliquées sur des données de vieillissement en cyclage de batteries lithium-ion fournies par EIFER. Une succession de cycles de charge et de décharge a été appliquée et l'évolution temporelle de la tension est étudiée.

Tableau 2 : Conditions opératoires du stack 5 cellules

Paramètre	Valeur
Stæchiométries anode/cathode	1.5 / 2
Pression relative H2/Air entrant	150 / 150 kPa
Différence de pression maximale admissible entre l'anode et la cathode	50 kPa
Température	60 °C
Humidité relative anode/cathode	0 / 70%
Densité de courant	0.6 A/cm <sup>2</sup>

#### 3. Methodologie

Le signal de tension (signal d'entrée) est divisé en deux parties (cf. fig. 2). Le signal « d'approximation » symbolisé  $A_i$ représente la partie basse fréquence et le signal de « détail » symbolisé  $D_i$ , représente la partie haute fréquence. La transformée en ondelettes filtre le signal d'entrée f(t).

Le signal d'approximation est successivement décomposé en deux nouveaux signaux : un signal de détail  $D_{i+1}$  et un nouveau signal d'approximation  $A_{i+1}$ . Le procédé décrit se répète autant de fois que de niveaux de décomposition *i*.



Fig. 2. Décomposition par ondelettes d'un signal f(t)

A chaque rang de décomposition est associé une bande de fréquence. Les limites des bandes de fréquences sont basées sur la fréquence d'acquisition des signaux *fs* et le nombre de niveaux de décomposition *i*. La bande de fréquences des signaux de détails est comprise entre  $\frac{1}{2^{i+1}}fs$  et  $\frac{1}{2^i}fs$  Hz et la bande fréquences des signaux d'approximation est comprise entre 0 et  $\frac{1}{2^{i+1}}fs$  Hz, en fonction du rang de décomposition *i*.

Après une étude de la littérature et suite à une évaluation des différents types d'ondelettes orthogonales, notre choix se porte sur l'ondelette de Daubechies d'ordre 4 (db4) pour sa bonne adaptabilité aux systèmes électrochimiques [18]. Le rang de décomposition est calculé à partir de l'équation (1) et donne lieu à 5 niveaux pour la pile à combustible et 3 niveaux pour la batterie Li-ion.

$$rang = \left| \frac{\log(\frac{f_s}{f_c})}{\log(2)} - 1 \right| \tag{1}$$

Où :

fs est la fréquence d'échantillonnage du signal

fc est la fréquence couverte par la source d'énergie utilisée, respectivement  $[10^{-4} - 10^{-2}]$  pour la pile à combustible et  $[10^{-2} - 10^{2}]$  pour les batteries [19-20].

[.] est la valeur entière inférieure

Suite à la décomposition du signal, l'entropie relative (RWP) est calculée selon l'équation (2).

$$RWP = \sum_{j} p_{j} * ln\left(\frac{p_{j}}{q_{j}}\right)$$
(2)

La RWP permet d'évaluer le degré de similitude entre deux différents signaux en se basant sur les distributions énergétiques [21]. Elle s'exprime par la somme des coefficients d'ondelettes  $p_j$  dans une gamme de fréquence choisie au cours du temps [22]. Un signal de référence q permet le calcul de l'entropie relative. Dans notre étude, le signal q est une portion du signal de tension recueillie en début de vie du système (t=0). Cela permet d'évaluer le vieillissement du système et sa perte de performances au cours du temps.

#### 4. RESULTATS EXPERIMENTAUX

#### 4.1. Test de vieillissement batterie

Le test de vieillissement dure 1400 heures au cours desquelles 200 cycles de charge/décharge sont répétés à une température de 45°C. La figure 3 présente l'évolution de la tension relevée aux bornes de la batterie en fonction du nombre de cycles. Deux pertes de performances sont visibles après 25 et 125 cycles de charge/décharge. Afin de les détecter, le signal de tension est découpé en morceaux comprenant 25 cycles chacun. Une portion du signal à l'état initial à t=0 est définie comme signal de référence (état sain, sans vieillissement).



Fig. 3. Evolution de la tension aux bornes de la batterie en fonction du nombre de cycles de charge/décharge

Après avoir appliqué la transformée en ondelettes (db4 et i=3), on représente l'entropie relative (cf. équation 2) en fonction du nombre de cycles de charge/décharge (cf. fig. 4).



Fig. 4. Evolution de l'entropie relative en fonction du nombre de cycles de charge/décharge

On remarque deux pics au bout de 25 et 125 cycles sur la figure 4, correspondant à une variation de l'entropie. Autrement dit, la portion du signal à l'état initial (signal de référence q) est différente des portions de signaux à 25 et 125 cycles. Ces deux fluctuations correspondent aux deux chutes de tension visibles sur la figure 3.

#### 4.2. Test de vieillissement pile à combustible

Le stack est vieilli pendant 1800 heures à courant nominal constant de 60 A. La figure 5 présente l'évolution de la tension

relevée aux bornes du stack au cours du temps. Des caractérisations statiques et dynamiques sont réalisées de façon hebdomadaire afin de quantifier la dégradation du système. Une courbe de polarisation et cinq spectres d'impédance pour plusieurs densités de courant, sont relevés à ces occasions. Cela correspond aux pics de tension présents de façon périodiques sur la figure 5. Ainsi le signal de tension subit un pré-traitement afin de les supprimer. On observe qu'après chaque caractérisation, les performances sont temporairement améliorées. Ce sont les phénomènes de dégradations dites réversibles et irréversibles. Lorsque les conditions opératoires auxquelles fonctionne la pile à combustible sont brusquement modifiées, les conditions d'humidification et de débits sont également différentes et peuvent conduire à ce phénomène. Davantage de précisions sont données dans l'article de Jouin et al. [23].

Afin d'évaluer la dégradation de la pile à combustible au cours du temps, nous considérons chaque portion de signal où la pile fonctionne dans conditions de tests données dans le tableau 2. On note ainsi 13 semaines de fonctionnement, soient 13 portions de signal de tension. La première portion servira de signal de référence q lors du calcul de la RWP.



Fig. 5. Evolution temporelle de la tension de la pile à combustible aux bornes du stack

L'ondelette de Daubechies d'ordre 4 (db4) est utilisée pour l'étude afin de vérifier un premier point en vue de la généralisation de la méthode à différents dispositifs électrochimiques. Pour ce qui est du rang de décomposition, il est ajusté à l'aide de l'équation 1 et donne *i*=5. L'entropie relative en fonction du nombre de cycles de charge/décharge est représentée sur la figure 6.



Fig. 6. Evolution de l'entropie relative en fonction du nombre de semaines (entre 2 caractérisations matérialisées par les pics)

Jusqu'à 1000 heures de fonctionnement, la pile à combustible se dégrade peu et de façon régulière. Au-delà, la vitesse de dégradation s'accroît de manière significative. Aussi, on observe une faible variation de l'entropie relative au cours du temps sur la figure 5.

Toutefois, quelques fluctuations apparaissent et deux hypothèses sont avancées pour les expliquer :

<u>Hypothèse n°1</u>: Les portions de signal ont une durée trop grande. La tension fluctue de manière importante. Les conditions opératoires ne sont pas stabilisées sur la portion de signal considérée.

<u>Hypothèse n°2</u>: Les phénomènes de dégradations réversibles/irréversibles, après les caractérisations (ou arrêt du système), impliquent un regain temporaire des performances.

Après 4 semaines de fonctionnement, on observe une variation importante de l'entropie, favorisant l'hypothèse n°2 qui suggère l'influe d'un regain de performances après caractérisations. En effet, le phénomène de réversibilité de la dégradation est très important à cet instant de l'essai. La portion du signal correspondante est matérialisée par un cercle sur la figure 5. D'autres fluctuations de l'entropie sont également visibles à d'autres instants, tels qu'après 6 semaines ou en fin de test (12 semaines). Dans ces cas-là, ce sera plutôt l'hypothèse 1 qui sera avancée.

Naturellement, l'approche par ondelettes est sensible à ces deux hypothèses. Cela implique un prétraitement rigoureux des données préalablement au calcul de l'entropie relative.

Néanmoins, il est nécessaire de souligner que l'entropie relative varie très peu au cours du temps au vue de l'échelle des ordonnées : [0-0.01]. Cela signifie que la dégradation subie par la pile à combustible est faible. En comparaison, l'entropie pour l'essai de vieillissement sur les batteries varie dans une gamme [0-0.25].

Ces plages de variations sont un indicateur qui permet de déterminer le degré de similitude entre les deux signaux comparés et d'en déduire une différence d'intensité de la dégradation (ou d'un défaut). Dans le cas où cette approche serait combinée à une approche de contrôle tolérant aux défauts, cela permettrait, après action du correcteur, d'en déduire si l'action a été efficace ou si elle doit être renforcée.

#### 5. CONCLUSION

L'efficacité de la combinaison du traitement par ondelettes et du calcul de l'entropie de Shannon a été validée avec succès pour le suivi de l'état de santé de 2 dispositifs électrochimiques: une pile à combustible de type PEM et une batterie lithium-ion. Par un simple suivi de l'évolution de la tension au cours du temps ou en fonction d'un nombre de répétitions (cycles de charge/décharge), cette approche innovante a permis d'estimer précisément et de manière fiable l'état de santé de chaque dispositif. Cela ouvre la voie à une amélioration de l'efficacité du système de gestion d'une batterie en vue d'un allongement de sa durée de vie. Il en est de même pour une pile à combustible où l'estimation de son état de santé permet de mieux contenir la dégradation en gérant les défaillances. L'entropie permet aussi d'estimer la vitesse de dégradation (sévérité d'un défaut) en fonction de l'amplitude de la RWP.

De plus, l'utilisation d'une même ondelette laisse entrevoir une généralisation de la méthode à d'autres dispositifs.

De futurs travaux seront engagés pour améliorer le prétraitement des données afin d'augmenter l'efficacité de l'approche. En effet, l'échantillonnage du signal s'est révélé important pour une bonne détection de l'état de santé. Des travaux d'optimisation de la période d'échantillonnage doivent

ainsi être mis en œuvre afin de pallier aux problèmes de stabilité des conditions opératoires.

#### 6. REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient la Région Bourgogne Franche-Comté (projet PHM-PàC), le partenariat avec EIFER ainsi que le Labex ACTION, ANR-11-LABX-01-01 pour avoir financé et permis la réalisation de ce travail et des campagnes expérimentales associées.

#### 7. References

- J. Kim, B.H. Cho, « An innovative approach for characteristic analysis and state-of-health diagnosis for a Li-ion cell based on the discrete wavelet transform », in J. Power Sources, vol. 260, 2014, p. 115-130.
- [2] Y. Zhou, M. Huang, Y. Chen, Y. Tao, « A novel health indicator for online lithium-ion batteries remaining useful life prediction », in J. Power Sources, vol. 321, 2016, p. 1-10.
- [3] N. Yousfi-Steiner, D. Hissel, P. Moçotéguy, D. Candusso, « Non intrusive diagnosis of polymer electrolyte fuel cells by wavelet packet transform », in Int. J. of Hydrogen Energy, vol. 36, 2011, p. 740-746.
- [4] E. Pahon, N. Yousfi Steiner, S. Jemei, D. Hissel, P. Moçoteguy, « A signal-based method for fast PEMFC diagnosis », in Applied Energy, vol. 165, 2016, p. 748–758.
- [5] S. K. Yadav, R. Sinha, P. K. Bora, Electrocardiogram signal denoising using non-local wavelet transform domain filtering, Signal Processing, IET, 9, 1, 2015, 88-96.J. Clerk Maxwell, A Treatise on Electricity and Magnetism, 3rd ed., vol. 2. Oxford: Clarendon, 1892, pp.68-73.
- [6] M. Nazarahari, S. G. Namin, A. H. D. Markazi, A. K. Anaraki. A multiwavelet optimization approach using similarity measures for electrocardiogram signal classification, Biomedical Signal Processing and Control 20, 2015, 142-151
- [7] J.C. Ehrenthal, C. Herrmann-Lingen, M. Fey, H. Schauenburg. Altered cardiovascular adaptability in depressed patients without heart disease, World J. Biol. Psychiatry 11, 2010, 586–593.
- [8] M. Kang, J.M. Kim. Reliable fault diagnosis of multiple induction motor defects using a 2-D representation of Shannon wavelets, *IEEE Trans. on Magnetics*, 50, 10, 2014, 1-14
- [9] H.N. Alves, R.N.B. Fonseca. An algorithm based on discrete wavelet transform for fault detection and evaluation of the performance of over current protection in radial distribution systems, *IEEE Latin America Trans.*, 12, 4, 2014, 602-608.
- [10] S. Avdakovic, A. Nuhannovic, M. Kusljugi, M. Music. Wavelet transform applications in power system dynamics, Electr. Power Syst. Res., 83, 2012, 237-245.
- [11] M. Uzunoglu, M. S. Alam, Modeling and analysis of an FC/UC hybrid vehicular power system using a novel-wavelet-based load sharing algorithm, *IEEE Trans. on Energy Conversion*, 23, 1, 2008, 263-272.
- [12] G. Livint, A. G. Stan, Control strategies for hybrid electric vehicles with two energy sources on board, *International Conference and Exposition on Electrical and Power Engineering (EPE)*, 2014, 142-147.
- [13] Y. Ates, O. Erdinc, M. Uzunoglu, B. Vural. Energy management of an FC.UC hybrid vehicular power system using a combined neural networkwavelet transform based strategy, *Int. J. Hydrogen Energy*, 35, 2010, 774-783.
- [14] Y. Fayyad, L. Ben-Brahim. A wavelet-based passive islanding detection technique, Int. Conf. on Renewable Energy Research and Applications, 2012, 1-6.
- [15] K.L.V. Iyer, X. Lu, Y. Usama, V. Ramakrishnan, N.C. Kar. A twofold daubechies-wavelet-based module for fault detection and voltage regulation in seigs for distributed wind power generation. *IEEE Trans. Ind. Electron.* 2013, 60, 4, 1638-1651.
- [16] P.K. Ray, N. Kisher, S.R. Mohanty. Islanding and power quality disturbance detection in grid-connected hybrid power system using wavelet and S-transform, *IEEE Trans. On Smart grids*, 2012, 3, 3, 1082-1094.
- [17] The Department of Energy Hydrogen and Fuel Cells Program Plan, U. D. of Energy, 2011 [Online]. Available: http://www.hydrogen.energy. gov/roadmaps\_vision.html
- [18] M. Ibrahim, S. Jemei, G. Wimmer, N. Yousfi Steiner, C. C. Kokonendji, D. Hissel, « Selection of mother wavelet and decomposition level for energy management in electrical vehicles including a fuel cell », in Int. J. of Hydrogen Energy, 2015, p. 1-11.

- [19] C. Akli, Conception systématique d'une locomotive hybride autonom. Application à la locomotive hybride de démonstration et d'investigation en énergétique LHyDIE développée par SNCF, PhD of the University of Toulouse, 2008.
- [20] K. Agbli, Energy flows modelling of a PEM electrolyser-photovoltaic generator PEM fuel cell coupling dedicated to stationary applications, PhD of the University of Franche-Comté, 2012.
- [21] O.A. Rosso, S. Blanco, J. Yordanova, V. Kolev, A. Figliola, M. Schurmann and E. Basar, « Wavelet Entropy: A New Tool for Analysis of Short Duration Brain Electrical Signals », in J. of Neuroscience Methods, vol. 105, 2001, p. 65-75.
- [22] M. Emre Cek, M. Ozgoren, F. Acar Savaci, « Continuous time wavelet entropy of auditory evoked potentials », in Computers in Biology and Medicine, vol. 40, 2010, p. 90-96.
- [23] M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M.-C. Péra, N. Zerhouni. Degradations analysis and aging modeling for health assessment and prognostics of PEMFC, Reliability Engineering & System Safety, vol. 148, 2016, pp. 78-95.