

# **Approche de modélisation/expérimentation de l’emballage thermique**

---

Un des objectifs de la thèse est d’aboutir à un modèle prédictif de l’emballage thermique des batteries Li-ion. Pour arriver à ce niveau de prédiction, notre démarche s’appuie simultanément sur les travaux de modélisation, permettant le développement de nos différents sous-modèles, et sur les travaux expérimentaux, permettant dans un premier temps la calibration de ces modèles, puis dans un deuxième temps leur validation. Cette démarche sera impactée par le choix des cellules (limité à deux types de chimie dans le cadre de la thèse). Dans ce 2<sup>ème</sup> chapitre de notre étude de l’emballage thermique à l’échelle de la cellule et du module, nous présenterons cette approche couplée de modélisation/expérimentation qui concerne aussi bien les cellules neuves que les cellules vieilles.

La 1<sup>ère</sup> partie de ce chapitre présentera notre stratégie de modélisation dans laquelle le modèle de l’emballage thermique est construit à partir de 3 sous modèles : un modèle chimique de l’emballage thermique, un modèle thermique de la cellule et un modèle statique du vieillissement. La mise à l’échelle de notre modèle, de la cellule au module, sera également abordée. La 2<sup>ème</sup> partie de ce chapitre présentera le choix des cellules et des modules qui seront utilisés dans les travaux expérimentaux. Dans cette partie, seront également exposés les matériels utilisés et les méthodes exploitées dans les campagnes expérimentales de calibration et de validation du modèle de l’emballage thermique à l’échelle de la cellule et du module.

# 1 Stratégie de modélisation

---

Dans ce qui suit, la stratégie de modélisation sera détaillée à travers la présentation des différents sous-modèles. Nous développerons en premier lieu le modèle de l'emballage thermique à l'échelle de la cellule. Ensuite nous procéderons à une mise à l'échelle, pour obtenir un modèle de la propagation de l'emballage thermique au sein du module.

## 1.1 Modélisation de l'emballage thermique à l'échelle de la cellule

Le modèle est développé avec le logiciel de calcul aux éléments finis COMSOL Multiphysics (version 5.2), qui permet le couplage de plusieurs phénomènes physiques. L'approche de modélisation de l'emballage thermique développé à l'échelle de la cellule Li-ion, repose sur un couplage entre le comportement physico-chimique des différents constituants de la cellule lors de l'emballage thermique qui fournit une source de chaleur locale et un bilan thermique réalisé à l'échelle de la cellule, de façon à connaître le champ de température en 3D. L'influence du vieillissement sur la stabilité thermique des cellules dans ces conditions sera également prise en compte par le biais d'un modèle statique de vieillissement. Dans la Figure 2.1, les différents sous-modèles qui constituent notre approche de modélisation de l'emballage thermique sont illustrés à travers des blocs. Ces blocs sont reliés entre eux par les différents paramètres d'entrée et de sortie, traduisant ainsi l'intérêt de coupler ces sous-modèles. On peut distinguer :

- le sous-modèle 3D chimique de l'emballage thermique qui intègre les principaux mécanismes physico-chimiques liés à l'emballage thermique, en particulier les différentes réactions chimiques exothermiques liées à la dégradation des différents composants de la cellule. Ce sous-modèle permet l'estimation de la quantité de chaleur  $Q_{abuse}$  générée au sein de la cellule dans des conditions abusives.
- le sous-modèle 3D thermique à l'échelle de la cellule qui permet d'intégrer d'une part la source de chaleur  $Q_{abuse}$  dégagée dans les conditions abusives, et d'autre part les échanges thermiques de la cellule avec son milieu extérieur, estimés à travers le terme  $Q_{échange-cell}$ . Ce sous-modèle permet de calculer la température locale de la cellule. Cette température est renvoyée ensuite vers le sous-modèle chimique de l'emballage afin de réévaluer la chaleur volumique dégagée dans les conditions thermiques abusives.
- le sous-modèle statique du vieillissement, basé sur le modèle ECT intégrant le vieillissement qui a été développé à IFPEN [PRA13], [EDO15b] dans lequel la perte de lithium cyclable par la formation et l'accroissement de la couche SEI est considérée comme étant le mécanisme prépondérant dans la première phase de perte de capacité d'une cellule Li-ion. Ce sous-modèle est capable de fournir l'épaisseur de la couche de SEI formée pendant le vieillissement de la cellule.

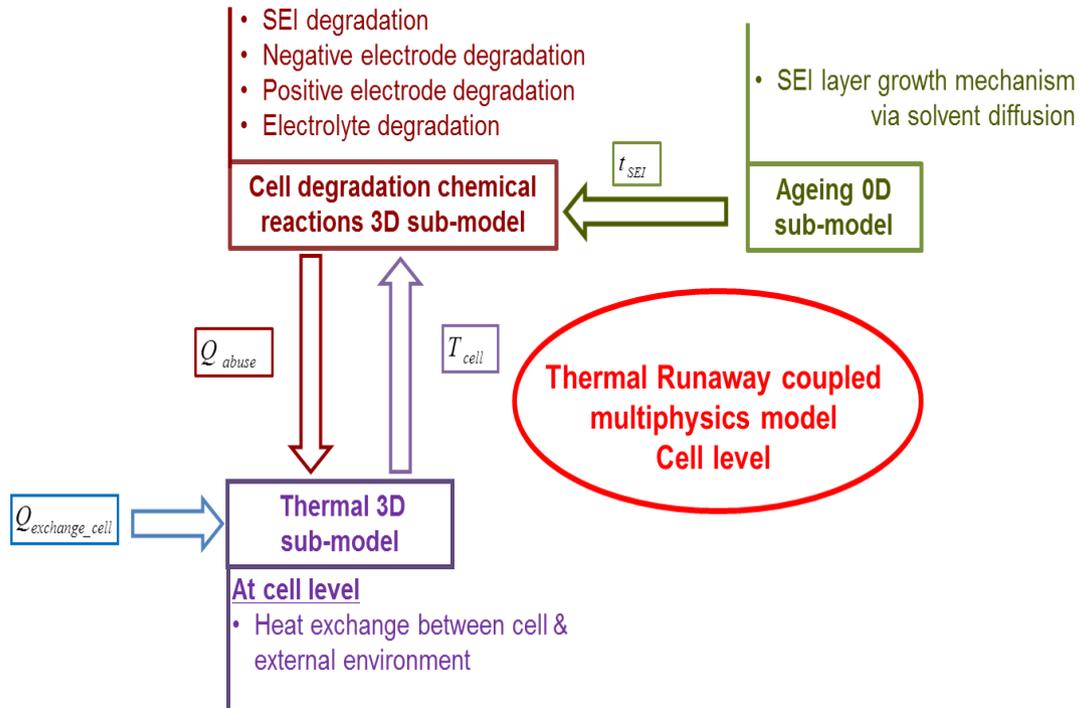


Figure 2.1. Modélisation de l'emballage thermique à l'échelle cellule

### 1.1.1 Modèle chimique de l'emballage thermique

Le but du modèle chimique de l'emballage thermique est d'évaluer la chaleur volumique globale dégagée au sein de la cellule dans des conditions thermiques abusives. Cette chaleur est libérée par les différentes réactions chimiques exothermiques de dégradation des composants de la cellule. La quantité de chaleur dégagée est exprimée à partir de l'équation (1.41) basée sur le modèle de Kim et al. [KIM07] (cf. section § 4.2.2.a du chapitre 1), à l'exception du terme lié à la réaction entre le matériau de l'électrode négative et le liant. L'équation (1.41) devient alors :

$$\dot{Q}_{abuse} = \dot{Q}_{SEI} + \dot{Q}_{ne} + \dot{Q}_{pe} + \dot{Q}_{ele} \quad (2.1)$$

#### a. Chaleur dégagée lors de la réaction de dégradation de la SEI :

Lors de la réaction de dégradation de la SEI, la couche métastable se transforme en couche stable selon la vitesse de réaction exprimée par la loi d'Arrhenius :

$$\frac{dc_{SEI}}{dt} = -R_{SEI} = -A_{SEI} \exp\left[-\frac{E_{a,SEI}}{RT}\right] c_{SEI}^{m_{SEI}} \quad (2.2)$$

où :  $c_{SEI}$  est la quantité adimensionnelle de lithium intercalé que contient la SEI métastable

$R_{SEI}$  est la vitesse de réaction ( $s^{-1}$ ).

$A_{SEI}$  ( $s^{-1}$ ) et  $E_{a,SEI}$  ( $J mol^{-1}$ ) sont les paramètres cinétiques de la réaction, exprimant respectivement le facteur de réaction et l'énergie d'activation.

$c_{SEI}^{m_{SEI}}$  exprime la quantité adimensionnelle de lithium intercalé que contient la SEI métastable, et  $m_{SEI}$  est l'ordre de réaction.

Le taux de production de chaleur volumique ( $J m^{-3} s^{-1}$ ) lors de cette réaction peut être exprimé avec la relation suivante :

$$\dot{Q}_{SEI} = H_{SEI} W_c R_{SEI} \quad (2.3)$$

où  $H_{SEI}$  représente la quantité de chaleur spécifique dégagée par gramme de carbone ( $J g^{-1}$ ), et  $W_c$  la quantité volumique de carbone contenue dans l'électrode négative ( $g m^{-3}$ ).

### b. Chaleur dégagée lors de la réaction à l'interface électrode négative / électrolyte :

Le lithium intercalé dans le graphite réagit avec l'électrolyte et forme à son tour une couche SEI stable. Etant donné que cette réaction a lieu à des températures élevées, la diffusion n'est pas prise en compte et la vitesse de réaction sera liée uniquement à la variation de la valeur adimensionnelle de l'épaisseur de la couche de la SEI formée ( $t_{SEI}$ ), ainsi qu'à celle de la quantité de lithium contenue dans l'électrode négative ( $c_{ne}$ ). La vitesse de réaction est exprimée également par une loi d'Arrhenius :

$$\frac{dt_{SEI}}{dt} = -\frac{dc_{ne}}{dt} = -R_{ne} = -A_{ne} \exp\left[-\frac{t_{SEI}}{t_{SEI,ref}}\right] c_{ne}^{m_{ne}} \exp\left[-\frac{E_{a,ne}}{RT}\right] \quad (2.4)$$

où :  $R_{ne}$  est la vitesse de réaction ( $s^{-1}$ ).

$A_{ne}$  ( $s^{-1}$ ) et  $E_{a,ne}$  ( $J mol^{-1}$ ) sont les paramètres cinétiques de la réaction, exprimant respectivement le facteur de réaction et l'énergie d'activation.

$c_{ne}^{m_{ne}}$  exprime la quantité adimensionnelle de lithium intercalé dans le graphite de l'électrode négative et  $m_{ne}$  est l'ordre de réaction.

Le taux de production de chaleur volumique ( $J m^{-3} s^{-1}$ ) lors de cette réaction peut être exprimé avec la relation suivante :

$$\dot{Q}_{ne} = H_{ne} W_c R_{ne} \quad (2.5)$$

où  $H_{ne}$  représente la quantité de chaleur spécifique dégagée par gramme de carbone ( $J g^{-1}$ ), et  $W_c$  la quantité volumique de carbone contenue dans l'électrode négative ( $g m^{-3}$ ).

### c. Chaleur dégagée lors de la réaction entre l'électrode positive et l'électrolyte :

La réaction entre l'électrode positive et l'électrolyte est décrite comme une réaction autocatalytique. La vitesse de cette réaction s'écrit donc en fonction du taux de conversion  $\alpha$ . Elle est exprimée par la loi d'Arrhenius suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = -R_{pe} = -A_{pe} \alpha^{m_{pe}^p} (1 - \alpha)^{m_{pe}^r} \exp\left[-\frac{E_{a,pe}}{RT}\right] \quad (2.6)$$

où :  $R_{pe}$  est la vitesse de réaction ( $s^{-1}$ ).

$A_{pe}$  ( $s^{-1}$ ) et  $E_{a,pe}$  ( $J mol^{-1}$ ) sont les paramètres cinétiques de la réaction, exprimant respectivement le facteur de réaction et l'énergie d'activation.

$\alpha$  est le facteur de conversion de la réaction de l'électrode positive

$m_{pe}^p$  et  $m_{pe}^r$  sont respectivement les ordres de réaction de la formation du produit catalytique issue de l'oxydation du solvant et celui de la dégradation de la matière active de la positive.

Le taux de production de chaleur volumique ( $J m^{-3} s^{-1}$ ) lors de cette réaction peut être exprimé avec la relation suivante :

$$\dot{Q}_{pe} = H_{pe} W_p R_{pe} \quad (2.7)$$

où  $H_{pe}$  représente la quantité de chaleur spécifique dégagée par gramme de matière active ( $J g^{-1}$ ), et  $W_p$  la quantité volumique de matière active que contient l'électrode positive ( $g m^{-3}$ ).

#### d. Chaleur dégagée lors de la réaction de décomposition de l'électrolyte :

La modélisation de la décomposition de l'électrolyte consiste à évaluer la variation de la concentration adimensionnelle de l'électrolyte dont la vitesse est exprimée par la loi d'Arrhenius suivante :

$$\frac{dc_e}{dt} = -R_e = -A_e \exp\left[-\frac{E_{ae}}{RT}\right] c_e^{m_e} \quad (2.8)$$

où :  $R_e$  est la vitesse de réaction ( $s^{-1}$ ).

$A_e$  ( $s^{-1}$ ) et  $E_{ae}$  ( $J \text{ mol}^{-1}$ ) sont les paramètres cinétiques de la réaction, exprimant respectivement le facteur de réaction et l'énergie d'activation.

$c_e^{m_e}$  exprime la concentration adimensionnelle de l'électrolyte et  $m_e$  est l'ordre de réaction.

Le taux de production de chaleur volumique ( $J \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ ) lors de cette réaction peut être exprimé avec la relation suivante :

$$\dot{Q}_e = H_e W_e R_e \quad (2.9)$$

où  $H_e$  représente la quantité de chaleur spécifique dégagée par gramme d'électrolyte ( $J \text{ g}^{-1}$ ), et  $W_e$  la quantité volumique de l'électrolyte ( $\text{g m}^{-3}$ ).

Les valeurs des paramètres cinétiques de ces réactions de dégradation ont été extraites des travaux expérimentaux effectués dans le cadre de cette thèse avec les cellules étudiées.

### 1.1.2 Modèle thermique 3D

Le modèle thermique est tridimensionnel. Il utilise les propriétés thermiques globales de la cellule. La source de chaleur locale dans les conditions thermiques abusives  $\dot{Q}_{abuse}$  est importée du sous-modèle chimique de l'emballage thermique, et la dissipation de la chaleur du cœur jusqu'à la peau de la cellule est modélisée par le terme de conduction. Le bilan thermique au sein de la cellule est exprimé par l'équation suivante où la conductivité thermique  $k$  est un vecteur à 3 composantes pour prendre en compte l'anisotropie de la température dans la cellule :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \dot{Q}_{abuse} + k_r \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + k_r \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + k_z \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \quad (2.10)$$

Les conditions limites selon les 3 directions de l'espace ( $n$ ) sont représentées par la relation ci-dessous où les transferts de chaleur par convection et par radiation sont estimés par le biais d'un seul coefficient équivalent  $h_{\acute{e}q}$  :

$$-k_n \frac{\partial T}{\partial n} = h_c(T_s - T_{amb}) + \varepsilon\sigma(T_s^4 - T_{amb}^4) \simeq h_{\acute{e}q}(T_s - T_{amb}) \quad (2.11)$$

Les valeurs des paramètres thermiques globaux de ce modèle ( $C_p$ ,  $\lambda_r$ ,  $\lambda_z$ ,  $h_{\acute{e}q}$ ) ont été estimées dans le cadre de cette thèse pour les cellules étudiées.

### 1.1.3 Modèle statique du vieillissement

Le modèle statique du vieillissement utilisé s'appuie sur le modèle électrochimique simplifié développé au sein d'IFPEN [PRA12a], [PRA13], [EDO15b]. Dans cette approche simplifiée, la batterie Li-ion est modélisée comme une superposition des trois milieux poreux solides que représentent l'électrode négative, le séparateur et l'électrode positive. Un modèle de vieillissement a été intégré à ce modèle, dans lequel la perte de lithium cyclable par la formation et l'épaississement de la couche SEI est considérée comme étant le mécanisme prépondérant dans la première phase de perte de capacité de la cellule. Cette croissance de couche est traduite par un mécanisme de réduction du

solvant (S) à la surface des particules de matière active de l'électrode négative, mécanisme simplifié selon l'équation de réaction suivante :



À partir de cette équation on peut exprimer le nombre de moles de la SEI formée en fonction de la perte de capacité de la cellule  $C$  en coulomb (C) avec la loi de Faraday :

$$n_{SEI} = C \cdot \frac{1}{2F} \quad (2.13)$$

La variation du nombre de mole de la couche de SEI est exprimée avec la relation :

$$dn_{SEI} = dC \cdot \frac{1}{2F} \quad (2.14)$$

On peut déduire la variation du volume de la SEI formée, ce qui nous donne :

$$dV_{SEI} = \frac{M_{SEI}}{\rho_{SEI}} \cdot dC \cdot \frac{1}{2F}$$

Enfin, pour estimer la croissance de l'épaisseur ( $\delta_{SEI}$ ) de la SEI correspondante, on part de l'hypothèse que le rayon de la particule de graphite (matière active de l'électrode négative) est très grand devant celui de la SEI formée. Ainsi l'équation sera réduite à :

$$d\delta_{SEI} = \frac{M_{SEI}}{\rho_{SEI} \cdot S_n} \cdot dC \cdot \frac{1}{2F} \quad (2.15)$$

Ensuite l'équation (2.16) sera intégrée entre  $t_0$  (état initial) et  $t$  (après vieillissement)

$$\int_{\delta_0}^{\delta} d\delta_{SEI} = \frac{M_{SEI}}{\rho_{SEI} \cdot S_n} \int_{C_0}^C dC \cdot \frac{1}{2F} \quad (2.16)$$

Après intégration on aura la relation qui donne la croissance de la couche de SEI correspondant à la perte de capacité  $C_{loss}$  que la cellule a subie pendant le vieillissement calendaire.

$$\Delta\delta_{SEI} \approx \frac{M_{SEI}}{\rho_{SEI} \cdot S_n} C_{loss} \frac{1}{2F} \quad (2.17)$$

La perte de capacité liée à la croissance de la SEI à l'interface de l'électrode négative sera déterminée dans le cadre de la thèse grâce à des tests de vieillissement calendaire accéléré.

## 1.2 Modélisation de l'emballement thermique à l'échelle du module

Afin de développer un modèle prédictif multi-échelle, il faut prendre en considération la propagation de l'emballement thermique d'une cellule à ses voisines dans le module. Pour cela, un bloc relatif aux échanges thermiques entre la cellule emballée et ses voisines a été intégré au modèle 3D thermique. (cf. Figure 2.2.).

Le terme lié aux échanges thermiques entre la cellule emballée et ses cellules voisines est donné par la relation suivante, qui traduit les conditions aux limites de la cellule emballée :

$$-k_n \frac{\partial T}{\partial n} = h_{\acute{e}q}(T_{s,j} - T_{amb}) + \sum_{k=1}^n Q_{jk} \quad (2.18)$$

où le terme  $\sum_{k=1}^n Q_{jk}$  exprime la somme des échanges entre la cellule emballée ( $j$ ) et ses  $n$  voisines selon la relation suivante :

$$Q_{jk} = Q_{jk,radiation} + Q_{jk,conduction-air} + Q_{jk,conduction-connector} \quad (2.19)$$

Les termes exprimant les transferts de chaleur par radiation entre 2 cellules, par conduction de l'air autour des cellules et par conduction à travers les languettes métalliques reliant les cellules, sont donnés dans le tableau 1.6 du chapitre 1 de ce manuscrit.

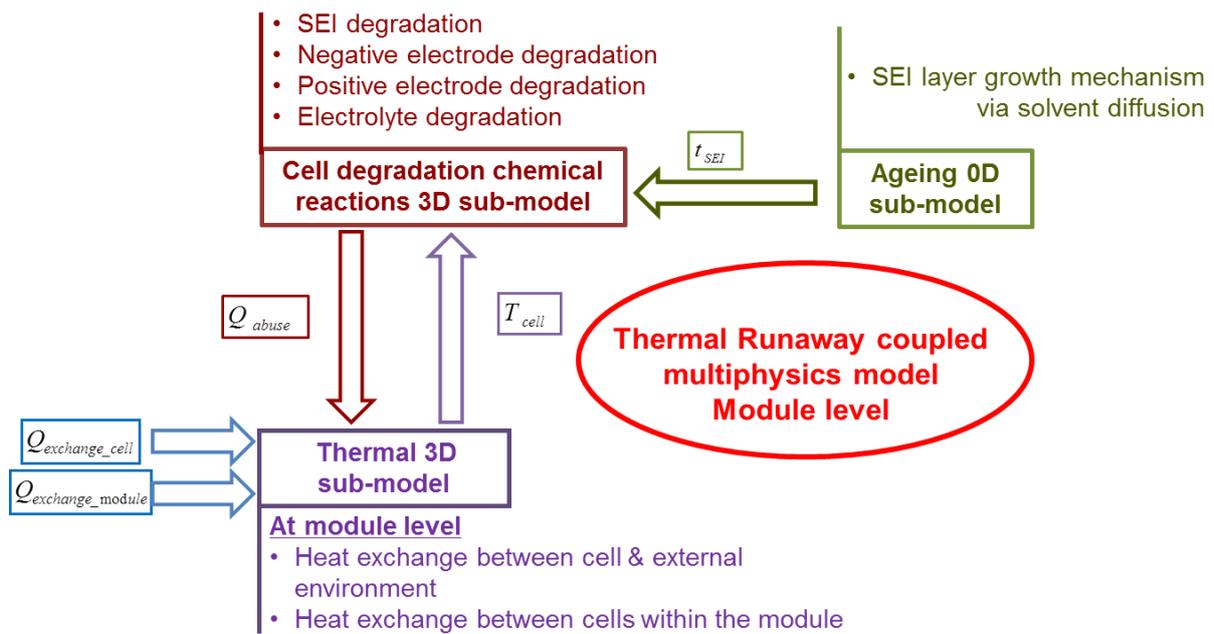


Figure 2.2. Modélisation de l'emballage thermique à l'échelle module

## 2 Stratégie expérimentale de la thèse

Après avoir présenté notre stratégie de modélisation de l'emballage thermique à travers les différents sous-modèles qui le constituent, nous allons exposer dans cette deuxième partie les travaux expérimentaux qui ont servi à la calibration et à la validation de nos sous-modèles. Les campagnes expérimentales sont présentées dans le Tableau 2.1 en fonction des sous-modèles testés.

Tableau 2.1. Campagnes expérimentales

| Sous-modèle              | Sous-modèle de vieillissement   | Sous-modèle chimique de l'emballage                                    | Sous-modèle thermique                                  |
|--------------------------|---|--|--|
| Campagnes expérimentales | Caractérisation de l'état initial des cellules<br>Vieillissement des cellules<br>Check-up de contrôle | Essais de calibration dans le BTC<br>Essais de validation dans le four | Caractérisation des propriétés thermiques des cellules |

Tout d'abord nous présenterons les cellules sélectionnées dans le cadre de notre étude. Ensuite, nous exposerons les protocoles de caractérisation électrique des cellules ainsi que les conditions de vieillissement appliquées dans le cadre du paramétrage du modèle statique du vieillissement. Puis la méthode de caractérisation thermique des cellules adaptée pour calibrer le modèle thermique sera présentée. Le matériel et la méthode utilisés lors des essais thermiques abusifs pour calibrer le modèle chimique de l'emballage thermique seront également décrits. Enfin, nous aborderons les essais classiques dans un four qui serviront à la validation de notre modèle.

### 2.1 Choix des cellules/modules pour cette étude

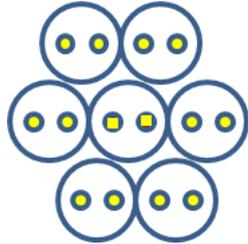
Dès le début de la thèse, deux chimies Li-ion ont été potentiellement identifiées : d'abord la chimie LFP/C, reconnue depuis longtemps pour sa bonne stabilité thermique (dite sécuritaire), ensuite la chimie NMC/C, plus réactive, pour comparaison. Ce choix s'est orienté aussi pour des raisons historiques liées aux travaux précédents, notamment les travaux de modélisation développés à IFPEN [PRA12b], [EDO15a].

Un inventaire des cellules disponibles à l'IFPEN a été réalisé au début de la thèse. Les différents lots de cellules ont été identifiés et classés selon la chimie, le fournisseur, le typage (énergie/puissance), la capacité, la géométrie, les données disponibles sur leurs états. Notre choix s'est porté sur les cellules présentées dans le Tableau 2.2.

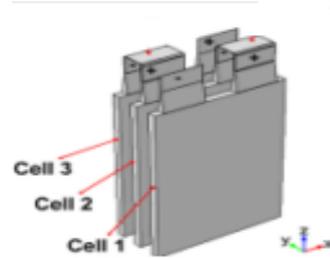
Tableau 2.2 : Cellules choisies pour cette étude

| LFP/C   |   | NMC/C   |
|---|---|---|
|  |  |  |
| <b>A123s (2,3 Ah)</b><br><b>Cylindrique</b>   | <b>LifeBatt (15 Ah)</b><br><b>Cylindrique</b>                                       | <b>PurePower HE (30 Ah)</b><br><b>Prismatique de type sachet</b>                      |

Les modules de batteries les plus communs sont constitués soit de cellules cylindriques (A123s, LifeBatt), soit de cellules prismatiques (PurePower). Nous avons orienté notre choix du design des modules à étudier vers les configurations suivantes, où les modules de cellules cylindriques sont constitués de 7 cellules et les modules de cellules prismatiques sont constitués de 3 cellules, les cellules étant branchées en série dans les deux cas.



Configuration du module avec 7 cellules cylindriques en série



Configuration du module avec 3 cellules de type sachet en série

Figure 2.3. Configurations des modules choisies

Pour mener les différentes campagnes expérimentales de la thèse, un nombre important de cellules était nécessaire comme le montre le Tableau 2.3 qui donne la répartition du nombre de cellules en fonction des différentes chimies, pour un total de 173 cellules. Comme pour les modules neufs, les modules vieillis comportent 7 cellules pour les batteries A123s et LifeBatt et 3 cellules pour les batteries PurePower afin d’avoir le même paramètre de configuration géométrique dans les deux cas. Ceci facilitera l’interprétation des résultats sur l’influence du vieillissement dans le cadre de nos essais de validation.

Tableau 2.3. Récapitulatif des cellules dédiées aux travaux de la thèse

| Technologies      | Cellules neuves |           | Cellules vieilles |           | Nb total de cellules |
|-------------------|-----------------|-----------|-------------------|-----------|----------------------|
|                   | Isolées         | En module | Isolées           | En module |                      |
| A123s (2,3 Ah)    | 6               | 21        | 12                | 28        | 67                   |
| LifeBatt (15 Ah)  | 6               | 21        | 12                | 28        | 67                   |
| PurePower (30 Ah) | 6               | 9         | 12                | 12        | 39                   |
| <b>TOTAL</b>      |                 |           |                   |           | <b>173</b>           |

## 2.2 Paramétrage du modèle statique du vieillissement calendaire

Il est nécessaire de paramétrer le modèle statique du vieillissement pour les cellules choisies. Etant donné que notre modèle du vieillissement prend en considération uniquement la croissance de la couche de la couche SEI, la détermination de ce paramètre est lié à la perte de capacité irréversible dans la cellule. En s’appuyant sur les travaux sur le vieillissement des batteries Li-ion, on peut considérer que le vieillissement calendaire est celui qui provoque la croissance de la couche SEI. Nous présentons dans ce qui suit les conditions du vieillissement calendaire choisies pour notre étude ainsi que les protocoles de contrôle (check-up) qui permettront de caractériser l’état des cellules et d’identifier leur niveau de vieillissement.

### a. Protocole de vieillissement des cellules

Comme il a été expliqué dans le chapitre 1, le vieillissement des cellules s'opère selon plusieurs mécanismes alors que, dans le cadre de notre étude, le mécanisme modélisé est celui de la croissance de la SEI. Pour que ce mécanisme soit prépondérant par rapport aux autres, la cellule doit subir un vieillissement accéléré calendaire (sans sollicitation de courant). Celui-ci dépend du temps, de la température et de l'état de charge de stockage des batteries. Le protocole du vieillissement accéléré appliqué, qui s'inspire des travaux du projet Simcal [DEL13], est le suivant :

- une température constante fixée à 60°C correspondant à la température de consigne de l'enceinte de chauffage.
- 1 seul état de charge (SOC), choisi à 100 %, car ce SOC a été identifié comme étant le plus efficace pour accélérer le vieillissement lors des travaux effectués précédemment [DEL13].
- l'objectif est d'atteindre 2 niveaux de perte de capacité, d'environ 10 % et 30 % par rapport à la capacité initiale.

Ces conditions de vieillissement ont été appliquées pour les 3 technologies choisies dans le cadre de notre étude. Des check-up (CU) mensuels au cours de la période de vieillissement ont été effectués pour caractériser l'état de dégradation des cellules à 10 % de perte de capacité, et à 30% de perte de capacité. Il s'agit de tests électriques qui permettent la détermination de la capacité et la résistance des cellules au cours du vieillissement.

### b. Tests de d'état des cellules : caractérisation des propriétés électriques des cellules

Le protocole de caractérisation électrique des cellules est issu des travaux effectués en particulier à IFPEN et dans le cadre du projet Simcal [DEL13]. Dans un premier temps, ces tests ont permis de qualifier l'état initial des cellules et d'écartier les éléments défectueux avant tout vieillissement. Ces tests électriques, effectués par la suite lors de check-up réguliers, ont permis de mesurer la stabilité des performances des éléments pendant leur vieillissement.

La figure ci-dessous illustre un test électrique type montrant les grandeurs courant-tension mesurées lors d'un check-up d'un élément A123s (2,3 Ah).

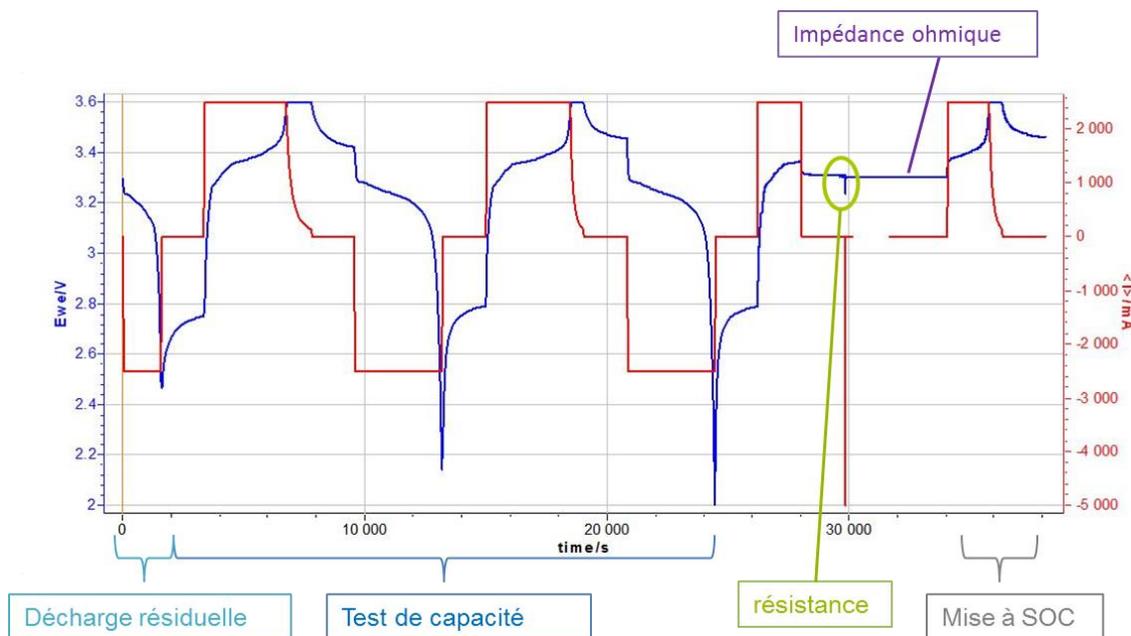


Figure 2.4. Protocole de caractérisation des cellules : Simulation via le logiciel EC-Lab- exemple d'une cellule A123s

A partir de ce check up, les propriétés électriques déterminées sont la capacité de la cellule, sa résistance interne et son impédance ohmique :

- la capacité

La technique la plus utilisée pour déterminer la capacité d'une cellule est la chronopotentiométrie à courant constant (CC) qui consiste à mesurer la variation de potentiel en appliquant un courant (négatif pour décharger la cellule, positif pour la charger) jusqu'à atteindre une valeur limite de tension (généralement la limite basse de la cellule pour la décharge et la limite haute pour la charge). Il est commun de faire suivre cette mesure par une chronoampérométrie (CV), où l'on fixe un potentiel (correspondant à la limite de tension du CC précédent) et l'on mesure la variation d'intensité jusqu'à ce qu'elle atteigne une valeur seuil. Ce protocole (CC-CV) permet un contrôle plus fin de la charge/décharge jusqu'à la pleine charge.

Dans le cadre de notre projet, comme illustré dans la Figure 2.4, 2 cycles à 25°C ont été réalisés. La cellule est mise en condition opératoire à travers le 1<sup>er</sup> cycle. Le 2<sup>ème</sup> cycle est censé assurer un état stable de la cellule. La capacité est donc mesurée à la fin du 2<sup>ème</sup> cycle. Le protocole de cyclage appliqué est le suivant :

- charge : CC-CV à 1C (se référant toujours à la capacité nominale) jusqu'à une tension de floating spécifiée pour chaque technologie dans le tableau ci-dessous. A partir de cette tension, l'élément continue à se charger en régulation de tension jusqu'à ce que le courant diminue en dessous du seuil d'arrêt de la charge, fixé ici à C/20 comme il est spécifié dans le tableau ci-dessous ;

- décharge : courant constant à 1C jusqu'à une tension de fin de décharge spécifiée dans le tableau ci-dessous.

Le tableau ci-dessous présente les critères de fin de charge et de fin de décharge utilisés pour cette phase, mais également lors de l'ensemble des tests électriques réalisés au cours du projet à l'échelle de la cellule.

Tableau 2.4 : Caractéristiques et critères de fin de charge/décharge des éléments testés

| Fournisseurs | Chimie | Capacité nominale (Ah) | Tension de floating (V) | Courant de fin de charge (A) | Tension de fin de décharge (V) |
|--------------|--------|------------------------|-------------------------|------------------------------|--------------------------------|
| A123s        | LFP/C  | 2,3                    | 3,60                    | 0,115                        | 2                              |
| LifeBatt     | LFP/C  | 15                     | 3,65                    | 0,750                        | 2                              |
| PurePower    | NMC/C  | 30                     | 4.2                     | 1,50                         | 3                              |

- la résistance interne

Pour le calcul de la résistance interne, des tests HPPC (Hybrid Pulse Power Characterization), décrits dans le rapport « Freedom CAR Battery Test Manual for Power-Assist Hybrid Electric Vehicles ». [FRE03], ont été effectués. Dans ces tests, différents profils de charge/décharge comprenant des sauts de courant positifs et des sauts de courant négatifs sont appliqués afin de calculer les résistances internes en charge et en décharge de la cellule. Dans le cas de notre étude, on a choisi de caractériser la résistance de l'élément avec un saut de courant d'une seconde en décharge à 2C (après une charge à 50% de SOC).

- l'impédance ohmique

L'impédance ohmique est mesurée classiquement par spectroscopie d'impédance électrochimique. Cette technique consiste à mesurer la fonction de transfert reliant la réponse en

tension de la cellule traversée par un courant alternatif de faible amplitude dans une certaine gamme de fréquences. Dans notre étude l'impédance a été déterminée à 50 % de SOC.

Enfin le protocole se conclut par une mise à 100 % du SOC de la cellule avant la poursuite du vieillissement. Le protocole de caractérisation détaillé ci-dessus est le même, quelle que soit la technologie considérée. Les check-up des cellules A123s (2,3Ah) ont été effectués à l'aide de potentiostats Biologic possédant un amplificateur de courant à 5 ou 20 A et une bonne précision de mesure ( $\pm 0,010$  A et  $\pm 0,023$  A, respectivement pour des courants de 5 A et 20 A). Cependant, du fait des forts courants mis en jeu lors du cyclage des cellules LifeBatt (15 Ah) & PurePower (30 Ah) de forte capacité, leurs check-up ont dû être réalisés sur des bancs de batteries Digatron capables de générer des courants de plus forte intensité.

## 2.2.1 Calibration du modèle thermique

Les propriétés thermiques à déterminer pour calibrer le modèle thermique sont les suivantes :

- $C_p$ , capacité thermique ( $J\ kg^{-1}\ K^{-1}$ )
- $k$ , conductivité thermique, vecteur à deux dimensions ( $W\ m^{-1}\ K^{-1}$ )
- $h$ , coefficient de transfert thermique ( $W\ m^{-2}\ K^{-1}$ )

Les différentes méthodes pour déterminer ces paramètres thermiques ont été présentées dans le premier chapitre de ce manuscrit (cf. § 5.1). Dans le cadre de notre étude, nous avons effectué un ajustement des paramètres thermiques d'un modèle 3D thermique simple du logiciel COMSOL sur des mesures expérimentales obtenues sur une cellule. Le modèle thermique implémenté sur COMSOL est exprimé par l'équation suivante :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(k \cdot \nabla T) + \dot{Q}_{\text{génération}} \quad (2.20)$$

où les paramètres thermiques  $C_p$ ,  $k$  et  $h$  sont les paramètres constants du modèle.

Le modèle a été calibré grâce à des données expérimentales obtenues dans des conditions quasi-adiabatiques dans l'ARC-IFPEN. Les paramètres d'entrée à mesurer expérimentalement (Figure 2.5) sont les suivants :

- la température : elle a été mesurée avec des thermocouples de type K disposés à différents endroits :

- dans l'enceinte de l'ARC pour mesurer la température dans l'environnement de la cellule ( $T_{ext}$ ).
- à la surface des bords haut et bas de la cellule pour mesurer les températures  $T_{haut}$ , et  $T_{bas}$ .
- à la surface latérale de la cellule pour déterminer la température  $T_c$ .

ce qui correspond aux conditions limites suivantes :

$$T_{haut}(t) = T(t, r, z = L) \quad (2.21)$$

$$T_{bas} = T(t, r, z = 0) \quad (2.22)$$

$$-k \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=R} = h_{\acute{e}q} (T(t, R, z) - T_{ext}) \quad (2.23)$$

- le flux de chaleur : on a appliqué un courant carré rapide de fréquence 1 Hz et d'une amplitude de 30 A. Ce profil de courant permet d'estimer la chaleur irréversible générée au sein de la cellule et de négliger la chaleur réversible. Ainsi, la chaleur générée est déterminée à partir de l'équation de flux suivante, où  $V$  est la tension de cellule et  $U$  la tension en circuit ouvert, et  $v$  est le volume total de la cellule :

$$\dot{Q}_{\text{génération}} = \frac{1}{v} (V - U) I \quad (2.24)$$

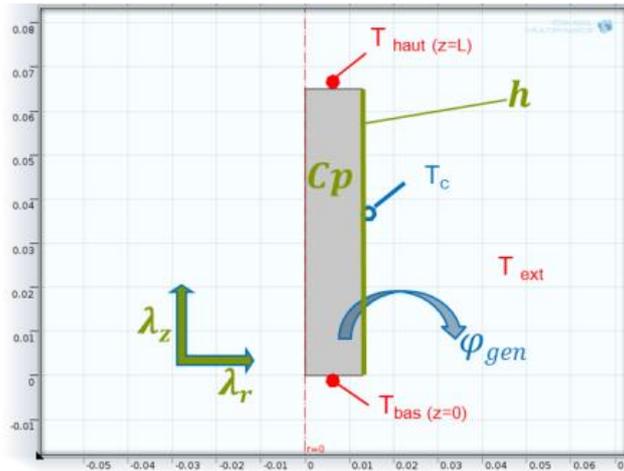


Figure 2.5. Paramètres du modèle thermique de la cellule

En ajustant les températures mesurées de la cellule avec les données de la simulation, on peut alors déterminer les valeurs des paramètres thermiques  $C_p$ ,  $k$  et  $h$  (paramètres constants).

## 2.2.2 Calibration du modèle de l'emballement

Les tests de calibration de l'emballement thermique sont effectués en conditions thermiques abusives dans la plateforme STEEVE à l'INERIS qui est dédiée aux tests de sécurité des batteries. Parmi les tests disponibles dans cette plateforme, nous avons choisi d'utiliser le BTC (Battery Testing Calorimeter). Les données exploitées à partir des tests dans le BTC ont pour but d'extraire certains paramètres nécessaires pour la calibration de notre modèle à l'échelle cellule. Parmi ces paramètres, nous pouvons citer la température seuil des réactions de dégradation exothermiques, les paramètres cinétiques, la chaleur dégagée lors de chacune des réactions, et la température de départ de l'emballement thermique.

### a. Présentation du BTC

Le BTC est un outil calorimétrique destinée à tester des batteries qui peuvent avoir une taille très variable. La Figure 2.6 représente un prototype fabriqué par HEL pour INERIS et utilisé dans le cadre de notre étude expérimentale. Comme on peut le voir sur cette figure, l'enceinte de ce dispositif a une forme cylindrique (35 cm de diamètre et 32,5 cm de hauteur). La chauffe est assurée au niveau de tous les côtés de l'enceinte (inférieur et latéral) ainsi qu'au niveau du couvercle supérieur. L'enceinte du BTC dispose également de plusieurs orifices permettant de relier les différents connecteurs de la batterie à tester. Le BTC a la particularité de s'auto-calibrer à chaque essai en fonction de la température ambiante externe. Cette calibration permet d'assurer au mieux les conditions pseudo-adiabatiques au sein de l'appareil.

Durant les expériences effectuées dans le BTC, la température de la cellule et la pression dans l'enceinte fermée sont mesurées en continu. Le système du BTC dispose de 7 programmes différents présentés dans le Tableau 2.5.



Figure 2.6. BTC à INERIS

Tableau 2.5 : Les différents programmes dont dispose le BTC

| Programmes                          | Description   |
|-------------------------------------|---|
| Adiabatic                           | nécessite l'identification des paramètres de l'étape de calibration du système pour assurer au mieux les conditions d'adiabaticité  |
| Isotherm                            | applique une fonction de chauffe/refroidissement dans le but de maintenir une température constante durant le test  |
| Ramp test                           | il suffit d'indiquer le pas de la rampe (en °C/min) pour que ce programme effectue un chauffage entre une température initiale et une température finale en assurant une vitesse de chauffe constante. Ce programme ne tient pas compte de la calibration du système  |
| Heat /Wait/ Search                  | le chauffage se fait suivant des rampes successives séparées par des pauses. Durant ces pauses et grâce à la bonne sensibilité du système (0,02°C/min), la recherche des exothermies s'effectue. Une fois l'exothermie détectée (température de surface augmentant de plus de 0,02°C/min), le chauffage s'arrête, permettant ainsi l'auto échauffement de la cellule dans des conditions pseudo-adiabatiques. Entre 2 exothermies le programme applique une étape d'ajustement des paramètres suivie d'une étape de calibration intermédiaire |
| Heat / Wait/ Search single exotherm | le même principe que le Heat / Wait/ Search est appliqué, sauf que le fonctionnement du programme est limité à la première exothermie détectée lors du test   |
| SAE Multi Ramp test                 | la même méthode de chauffage du programme   |

|                      |  |
|----------------------|--|
|                      | H.W.S décrit ci-dessus est appliquée, sauf qu'entre 2 exothermies aucune étape intermédiaire n'est requise. Dans ce cas le système reprend tout simplement la loi de chauffe à partir du palier suivant. |
| SAE Single Ramp test | le même principe du SAE Multi Ramp test est appliqué, sauf que le fonctionnement du programme est limité à une seule rampe de chauffage.   |

### b. Objectif du test

Cet essai vise à évaluer les effets thermiques et mécaniques obtenus en cas d'exposition accidentelle d'une cellule à une température plus élevée que la température maximale recommandée par le constructeur. Lors de cet essai, la cellule va subir une sollicitation thermique et, en fonction de sa réponse, on peut déterminer sa température maximale de stabilité et la température à partir de laquelle un emballement thermique a lieu. Ainsi les démarrages des réactions exothermiques et de l'emballement thermique au sein de la cellule pourront être identifiés. À partir de ces mesures on peut également estimer la quantité de chaleur dissipée par la cellule lors de l'emballement thermique.

### c. Dispositif expérimental

Comme l'illustre la Figure 2.7 pour la cellule cylindrique LifeBatt, la cellule testée est positionnée et maintenue mécaniquement au milieu de l'enceinte du BTC. Deux thermocouples sont positionnés de part et d'autre de la cellule (un du côté de l'électrode négative et l'autre du côté de l'électrode positive) pour suivre les températures  $T_{\text{haut}}$  et  $T_{\text{bas}}$  à la surface de la cellule au cours de l'essai. La cellule est ensuite recouverte avec une feuille d'aluminium afin d'assurer une bonne diffusion de la chaleur ; elle est enfin entourée par un cordon chauffant de résistance  $11 \Omega$  et de longueur 1 m. Celui-ci est maintenu fermement sur la surface de la cellule grâce à un film collant en aluminium. Les différentes sondes de température sont positionnées pour suivre l'évolution de la température dans l'enceinte du BTC.

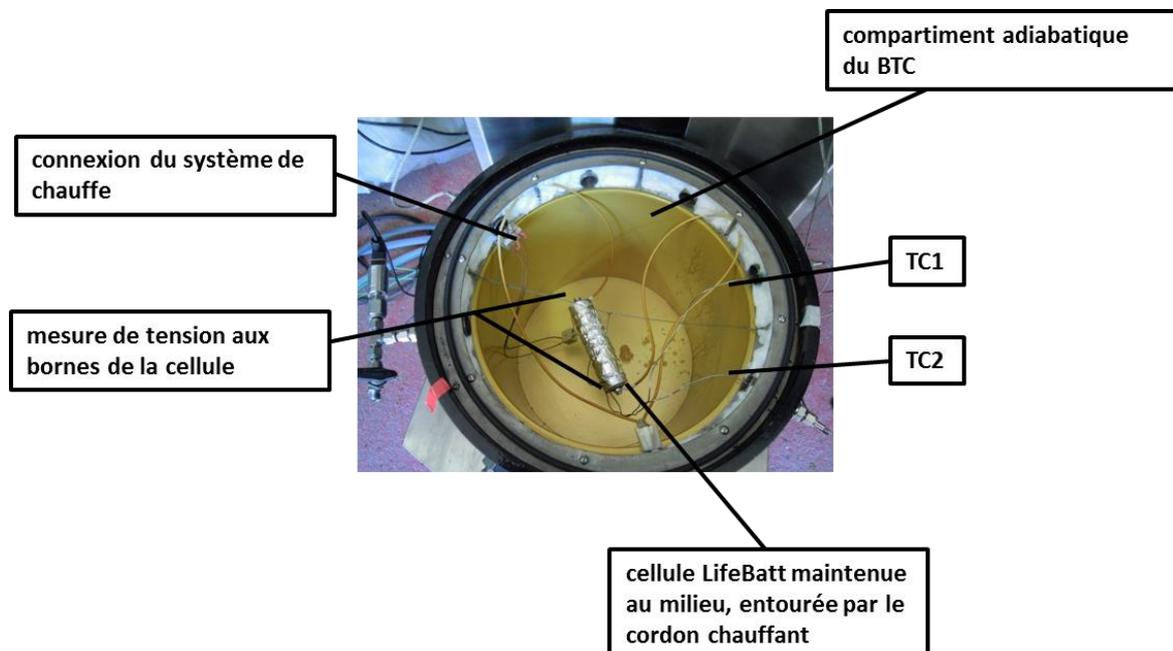
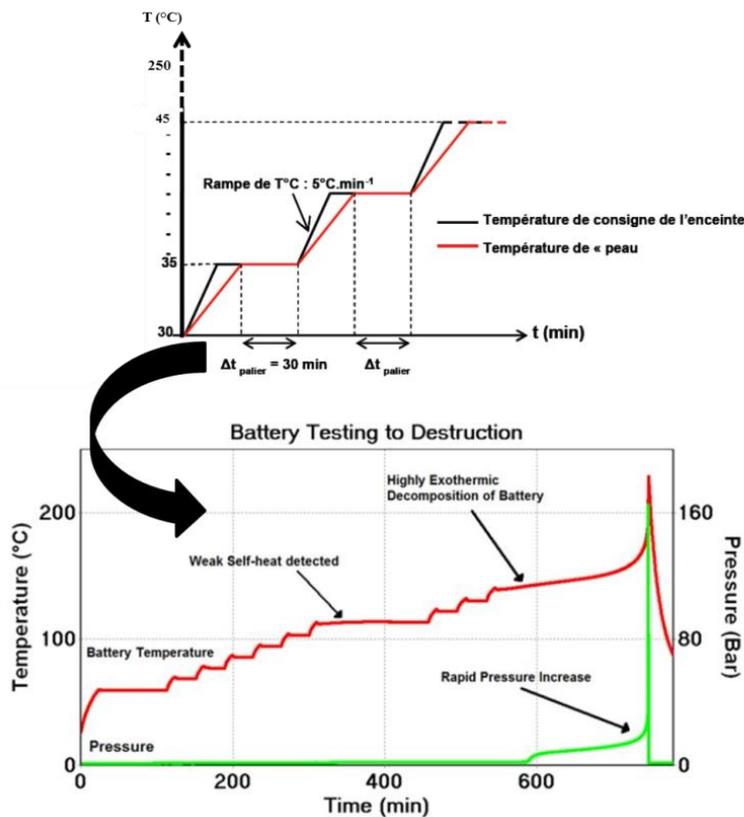


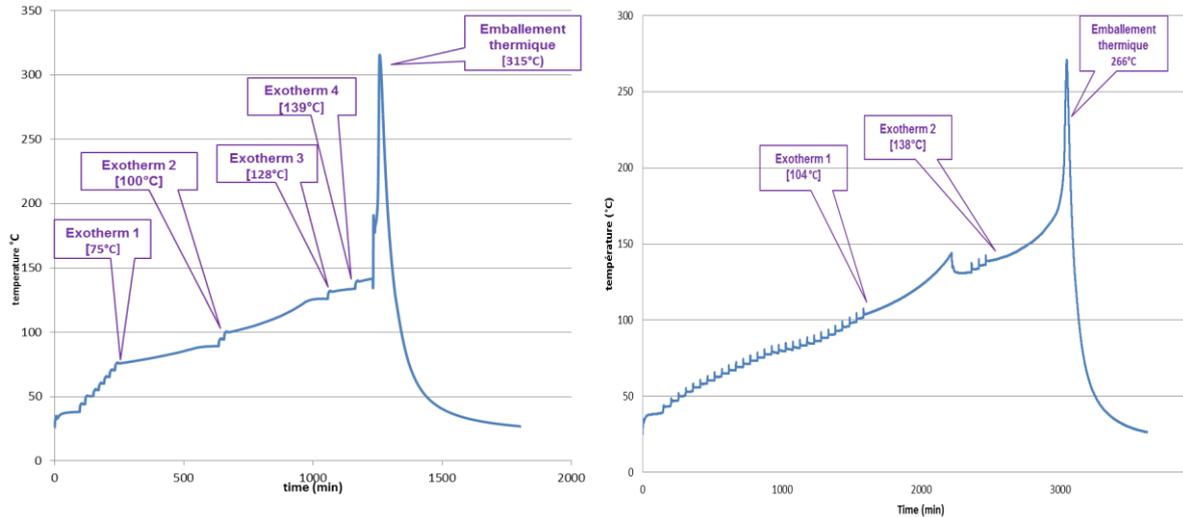
Figure 2.7. Dispositif expérimental dans le BTC

#### d. Protocole

Le principe général du test se base sur l'échauffement de la cellule dans des conditions adiabatiques. Une étape de calibration du programme est requise au début de chaque test pendant une durée recommandée de 90 min. Ensuite, la température de consigne est augmentée par palier de 5°C avec une rampe de température de 5°C/min. Chaque palier de température est maintenu pendant 30 minutes dès lors que la température de surface de la cellule est égale à la température de consigne (cf. Figure 2.8). La température de consigne maximum recommandée par le constructeur est 250°C. Si une exothermie est détectée par le programme (cf. Figure 2.8), le système de chauffe du BTC s'arrête pour laisser la cellule réagir sans contrainte supplémentaire (auto-échauffement). Dès que la vitesse de l'auto échauffement de la cellule baisse, le système reprend en main l'échauffement par palier. Dès que la température de la cellule dépasse 350°C et/ou la pression dépasse 3,5 bars, la soupape du BTC s'ouvre pour le refroidissement.



Dans le cadre de notre étude de calibration, le but des essais dans le BTC est l'identification des différentes réactions exothermiques qui ont lieu au sein de la cellule lors de l'emballement thermique. Les programmes recommandés par le fabricant du BTC sont le "Heat.Wait.Search test" et le "SAE Multi Ramp test". Ces 2 programmes ont été appliqués respectivement sur les cellules LifeBatt BAT317 et BAT318, la Figure 2.9 présentant l'évolution de la température à la surface de chacune de ces cellules.



a) "SAE multi ramp test" sur BAT317

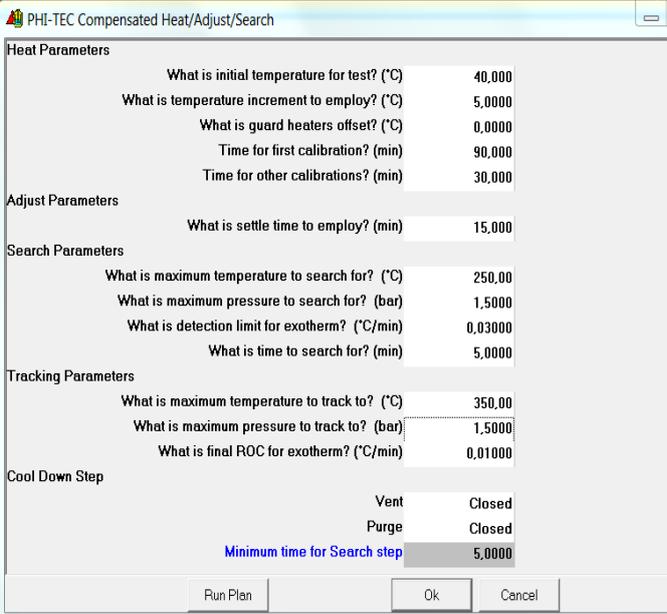
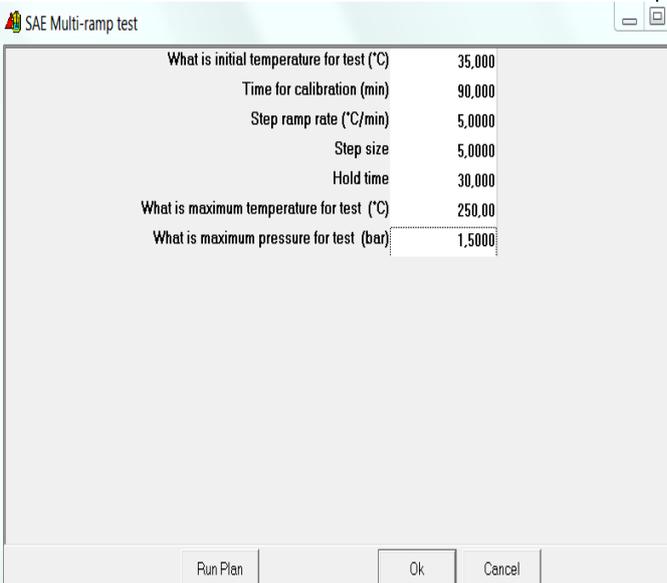
b) "HWS test" sur BAT318

Figure 2.9. Comparaison entre les programmes du BTC

Le Tableau 2.6 rassemble les résultats obtenus lors des essais avec ces 2 programmes. Le programme le plus approprié pour notre étude expérimentale est le "SAE Multi Ramp test" avec lequel la cellule semble mieux réagir car elle ne subit pas de contraintes de contrôle sur son auto-échauffement. En effet, après une exothermie, le programme de chauffe du "SAE Multi Ramp test" incite le système à se caler sur la température maximum atteinte lors de l'auto-échauffement de la cellule. La poursuite de la loi de chauffe se fait ensuite à partir du palier de température supérieur. Par contre, le "HWS test" impose une étape d'ajustement suivie d'une calibration des paramètres, ce qui a tendance à freiner l'auto-échauffement de la cellule. Ainsi, après une exothermie, le système tente de ramener la température de la cellule atteinte lors de son auto-échauffement à la rampe la plus proche afin de poursuivre sa loi de chauffe. De plus, la cellule subit une baisse de température avant d'entamer le palier suivant. Enfin, le test "HWS" nécessite beaucoup plus de temps d'essai.

Les 4 réactions exothermiques mentionnées dans notre modèle de l'emballement thermique à l'échelle de la cellule ont été identifiées au cours du "SAE Multi Ramp test". Ce test sera donc appliqué pour la suite des tests consacrés à la calibration du modèle chimique de l'emballement thermique.

Tableau 2.6 : Méthodes de chauffe potentielles pour notre étude

| Programmes                   | Protocole appliqué  | Observations   |
|------------------------------|---|--|
| Heat Wait Search (Bat318)    |  <p>PHI-TEC Compensated Heat/Adjust/Search</p> <p>Heat Parameters</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>What is initial temperature for test? (°C) 40,000</li> <li>What is temperature increment to employ? (°C) 5,0000</li> <li>What is guard heaters offset? (°C) 0,0000</li> <li>Time for first calibration? (min) 90,000</li> <li>Time for other calibrations? (min) 30,000</li> </ul> <p>Adjust Parameters</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>What is settle time to employ? (min) 15,000</li> </ul> <p>Search Parameters</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>What is maximum temperature to search for? (°C) 250,00</li> <li>What is maximum pressure to search for? (bar) 1,5000</li> <li>What is detection limit for exotherm? (°C/min) 0,03000</li> <li>What is time to search for? (min) 5,0000</li> </ul> <p>Tracking Parameters</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>What is maximum temperature to track to? (°C) 350,00</li> <li>What is maximum pressure to track to? (bar) 1,5000</li> <li>What is final ROC for exotherm? (°C/min) 0,01000</li> </ul> <p>Cool Down Step</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>Vent Closed</li> <li>Purge Closed</li> <li>Minimum time for Search step 5,0000</li> </ul> <p>Run Plan Ok Cancel</p> | <p>Seulement <b>2 exothermies</b> ont été détectées.</p> <p>La température maximum atteinte lors de l’emballement thermique était en dessous de 300°C</p> <p>Emballement thermique survenu au bout de 50 heures d’essai</p> <p>Durée totale de l’essai : environ 60 heures</p>   |
| SAE Multi Ramp test (Bat317) |  <p>SAE Multi-ramp test</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>What is initial temperature for test (°C) 35,000</li> <li>Time for calibration (min) 90,000</li> <li>Step ramp rate (°C/min) 5,0000</li> <li>Step size 5,0000</li> <li>Hold time 30,000</li> <li>What is maximum temperature for test (°C) 250,00</li> <li>What is maximum pressure for test (bar) 1,5000</li> </ul> <p>Run Plan Ok Cancel</p>   | <p><b>4 exothermies</b> ont été détectées.</p> <p>Les rampes sont plus lisses, et les "overshots" observés lors du test (H.W.S) sont moins marqués.</p> <p>La température maximum lors de l’emballement thermique a dépassé 300°C</p> <p>Emballement thermique survenu au bout de 21 heures d’essai</p> <p>Durée totale de l’essai : environ 30 heures</p> |

## 2.3 Validation du modèle de l’emballement thermique à l’échelle de la cellule puis du module

Après avoir calibré le modèle de l’emballement thermique avec les essais dans le BTC pour les technologies étudiées, il est nécessaire de le valider au moyen de nouveaux essais. A l’échelle de la cellule, ce sont les essais au four qui seront utilisés, à la fois pour les cellules neuves et les cellules vieilles, afin de valider l’étude de l’influence du phénomène du vieillissement sur l’emballement thermique. A l’échelle des modules, pour valider le modèle de la propagation de l’emballement thermique, deux façons de déclencher l’emballement d’une des cellules du module ont été retenues, la surcharge et la surchauffe.

### 2.3.1 Test au four à l’échelle de la cellule

Des tests au four ont été effectués dans la plateforme STEEVE à INERIS pour valider le modèle de l’emballement thermique à l’échelle de la cellule. Cet essai classique est très fréquemment rapporté dans la littérature, notamment dans les essais thermiques abusifs [KIM07], [SPO07], [GUO13], [GUO10], [HAT01], [LOP15]. Pour ces tests nous avons utilisé une étuve de chez « France Etuves » dont la référence est : XL 1000. L’étuve est munie d’un programme spécifique de chauffe conçu pour cette étude. La cellule testée est installée au sein de l’étuve dans un bac de rétention (un exemple du dispositif expérimental est illustré dans la Figure 2.10). La cellule est donc chauffée par l’air ambiant au sein de l’étuve. Lors de l’essai, la tension et la température de surface de la cellule sont suivies en continu grâce à 5 thermocouples de type K répartis sur la surface de la cellule de la manière suivante : 1 thermocouple du côté de la borne négative, 1 thermocouple du côté de la borne positive, 1 thermocouple en dessous de la cellule et 2 autres thermocouples positionnés au milieu du corps de la cellule. Un extincteur d’eau est également installé dans l’étuve pour arrêter le départ éventuel d’un feu lors de l’essai. Un enregistrement vidéo est programmé afin de visionner le déroulement de l’essai.



Figure 2.10. Dispositif expérimental d’un test d’une cellule A123s dans l’étuve

Le protocole appliqué lors de ces essais est présenté dans la Figure 2.11. Sachant que la régulation de la consigne se fait sur la température de surface de la cellule, les étapes du protocole opératoire sont les suivantes :

1. l’étuve est préchauffée jusqu’à 35°C ; cette température est maintenue pendant 60 minutes.
2. une rampe est appliquée jusqu’à 200°C avec une vitesse de chauffe de 5°C/min.

3. dès que la température de la cellule atteint 200°C, une période de stabilisation de 120 minutes est requise ; ce temps est nécessaire pour s'assurer que la réaction de la cellule est complète.
4. Après cette période, l'étuve arrête de chauffer et la température de la cellule chute.

La consigne utilisée dans ce protocole sera appliquée comme entrée de notre modèle de l'emballement. Les simulations seront ensuite comparées avec l'évolution de la température de la cellule testée. Ainsi, le niveau de prédiction du modèle sera évalué par le niveau de correspondance entre les simulations du départ de l'emballement et l'évolution de la température enregistrée pendant ces essais au four.

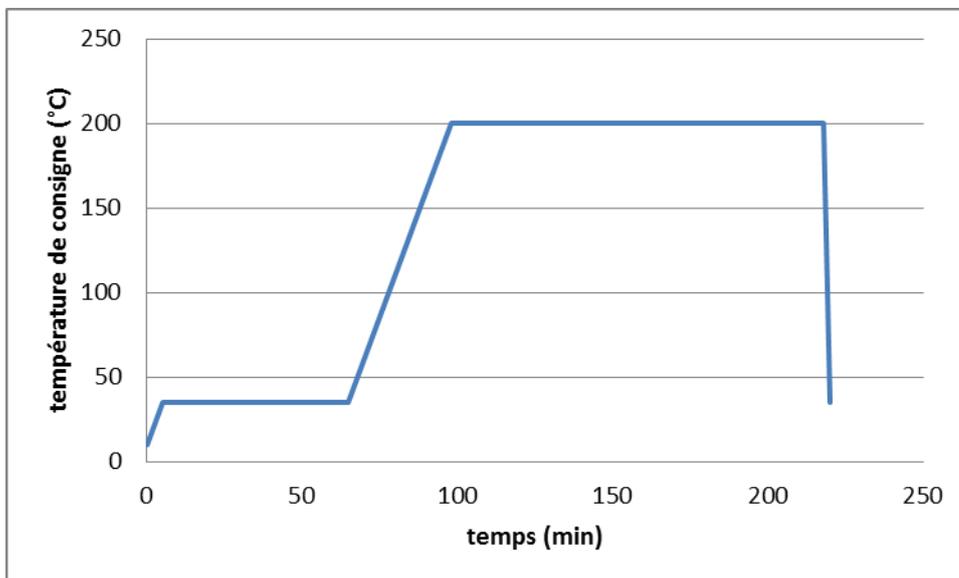
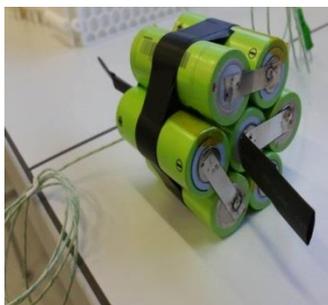


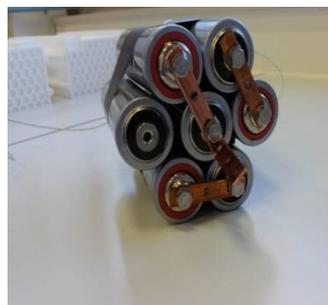
Figure 2.11. Protocole du test au four

### 2.3.2 Test de propagation au sein du module

Après avoir validé le modèle de l'emballement thermique au niveau de la cellule, il s'agira de valider le modèle à l'échelle du module. La mise à l'échelle consiste à modéliser la propagation de l'emballement d'une cellule à ses voisines au sein du module. Le travail nécessite alors le montage de différents modules avec des cellules issues des 3 technologies choisies, comme illustré dans la Figure 2.12.



A123s (7 cellules)



LifeBatt (7 cellules)



PurePower (3cellules)

Figure 2.12. Construction des modules

Pour valider le modèle de propagation, il est nécessaire d'appliquer des conditions prenant en compte les échanges thermiques du module avec son environnement, en plus des échanges thermiques entre les cellules voisines qui constituent ce module. Pour provoquer l'emballement thermique d'une des cellules du module, deux méthodes d'activation différentes ont été utilisées :

#### e. une surchauffe

Un élément chauffant sera la source d'activation de l'emballement d'une des cellules du module. Pour nos essais, nous avons utilisé 2 films adhésifs chauffants de référence KHLV-202/5, avec 20 W de puissance, et une densité de  $0,78 \text{ W/cm}^2$ . Chaque film mesure 5 cm sur 5 cm de dimensions. Ces 2 films chauffants sont alimentés avec un courant de (2,2 A/ 26,5 V), la température limite de fonctionnement de ces films est fixée par le constructeur à  $200^\circ\text{C}$ .

L'élément chauffant ne doit pas être en contact avec les cellules voisines pour que la propagation de l'emballement soit uniquement dû au transfert de la chaleur dégagée par la cellule chauffée ; l'élément chauffant sera donc collé sur une cellule en périphérie du module, comme indiqué dans la Figure 2.13. Vingt et un thermocouples numérotés sont positionnés sur les cellules pour suivre en continu l'évolution de leurs températures durant l'essai. Ces thermocouples sont positionnés de la manière suivante : 3 thermocouples par cellule non-chauffée (1 à proximité de la borne négative, 1 à proximité de la borne positive et 1 au milieu de la cellule), 2 thermocouples sur la cellule chauffée (1 à proximité de la borne négative et 1 à proximité de la borne positive), le dernier thermocouple mesurant la température de l'air ambiant. Au cours de l'essai, une fois la cellule emballée, l'alimentation du film chauffant est arrêtée.

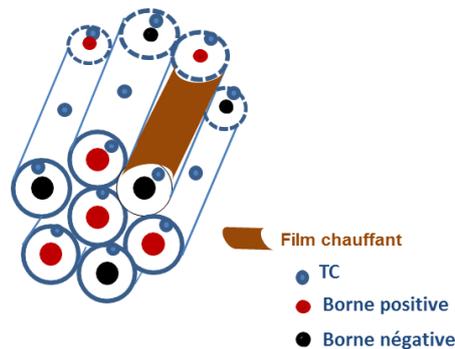


Figure 2.13. Essai de propagation par surchauffe

#### f. une surcharge (source électrique)

Une configuration identique a été utilisée pour l'essai de surcharge. Seul l'évènement déclencheur de l'emballement a été changé. C'est une surcharge sans limite de tension qui a été appliquée sur la cellule du milieu du module. Les courants de surcharge ont été fixés en fonction des limites conseillées par le fournisseur des cellules : 10A (A123s), 45A (LifeBatt), 60A (PurePower). Les thermocouples installés sur les cellules permettent, comme dans l'essai précédent, de suivre l'évolution des températures à la surface des cellules durant l'essai.

Lors des essais avec les modules, la tension aux bornes des cellules ne sera suivie en continu que dans le cas de la surcharge, et seulement pour la cellule surchargée par manque de matériels. Cependant, la tension de chaque cellule sera mesurée avant et après chaque essai.

Ces tests de validation à l'échelle du module se déroulent également dans la plateforme STEEVE à INERIS. Ils concernent les cellules neuves ainsi que les cellules vieilles pour étudier l'influence du vieillissement à cette échelle. L'évolution des températures enregistrées lors des tests sera comparée avec celle donnée par les simulations de notre modèle de l'emballement thermique à l'échelle des modules, ce qui permettra de mettre en évidence les échanges thermiques entre les cellules au sein du module.

## 3 Conclusion

---

Un modèle thermique 3D et un modèle chimique de l'emballage thermique ont été développés avec Comsol Multiphysics dans le cadre de ce travail de thèse. Afin d'intégrer le vieillissement dans l'étude de l'emballage thermique, un modèle statique de vieillissement a été paramétré, ce modèle du vieillissement est basé sur le modèle ECT développé lors de précédents travaux à IFPEN.

En identifiant les besoins en termes de caractérisation des cellules Li-ion LFP/C et NMC/C pour obtenir des données utiles à la calibration du modèle de l'emballage thermique intégrant le vieillissement, différents protocoles expérimentaux ont été mis au point à IFPEN et INERIS.

Enfin, la validation du modèle de l'emballage thermique a été effectuée dans la plateforme STEEVE à INERIS. L'étude de la propagation de l'emballage thermique a été introduite grâce aux essais effectués à l'échelle du module.

Les résultats relatifs à l'étude expérimentale présentée dans ce chapitre seront exposés dans le chapitre suivant.