



---

## STOCKAGE DE L'HYDROGÈNE SOUS FORME DE GAZ COMPRIMÉ

### Sommaire

1. **Remarques générales**
2. **Classes de réservoirs**
3. **Architecture type d'un réservoir « Haute Pression »**
4. **Les performances des stockages mobiles**
5. **Les solutions hybrides**
6. **Sûreté et Standards**
7. **Fabricants de réservoirs « haute pression »**
8. **Références**

### 1 – Remarques générales

Le stockage d'hydrogène est un verrou technique et scientifique pour le développement de la technologie de l'hydrogène (1). Mais des progrès récents offrent des solutions attractives, même si des travaux sont encore nécessaires dans les applications mobiles pour trouver une bonne adéquation entre les spécifications demandées (tant techniques qu'économiques) et les systèmes de stockage certifiés.

Le stockage de méthane sous forme de gaz comprimé (*compressed natural gas, CNG*, pour les anglo-saxons) est une pratique répandue depuis de nombreuses années. Son utilisation pour des véhicules automobiles a surtout concerné des utilitaires ou poids lourds ; il existe de nombreux fabricants de réservoirs « Haute Pression » qui travaillent selon des normes nationales et internationales bien établies.

Le stockage de l'hydrogène est techniquement plus difficile et plus coûteux du fait de sa très faible masse molaire et de sa très basse température de liquéfaction, tout particulièrement quand il s'agit d'un stockage mobile. Si l'état liquide s'impose indiscutablement quand le besoin se chiffre en tonnes, voire en dizaines de tonnes, le stockage à l'état gazeux sous pression présente de nombreux avantages quand les quantités mises en jeu ne dépassent pas quelques kilogrammes ou dizaines de kilogrammes. C'est le cas, en particulier, des véhicules routiers hybrides à pile à combustible pour lesquels on vise une autonomie de l'ordre de 600 à 700 km, voire moins pour des usages essentiellement urbains en complément d'une base électrique sur batteries ("*Range Extender*").

Le stockage et la distribution d'hydrogène sous pression sont cependant une pratique standard, depuis de très nombreuses années, avec des bouteilles ou assemblages de bouteilles cylindriques, en acier, gonflées à 20 ou 25 MPa (types I et II). L'inconvénient de ce mode de stockage est l'encombrement – seulement 14 kg/m<sup>3</sup> à 20 MPa et à température ordinaire (21°C) contre 100 kg/m<sup>3</sup> pour le méthane – et surtout le poids qui résulte de l'utilisation d'aciers à bas niveaux de contraintes pour éviter les problèmes de fragilisation par l'hydrogène. La situation a radicalement changé avec l'apparition de la technologie des réservoirs composites dits de type III ou IV. Leur principe de base est de séparer les deux fonctions essentielles que sont l'étanchéité et la tenue mécanique pour les gérer l'une indépendamment de l'autre. Dans ce type de réservoir on associe une vessie en résine (thermodurcissable ou thermoplastique) à une structure de renforcement constituée de fibres (verre, aramide, carbone) permettent de travailler à des pressions beaucoup plus élevées tout en réduisant la masse et en évitant les risques de rupture explosive en cas d'agressions externes sévères. C'est ainsi que 70 MPa est pratiquement devenu le standard actuel. Du fait des lois de compressibilité, cette valeur semble être une limite, même si des réservoirs de pression nominale égale ou supérieure à 100 MPa ont été réalisés à titre expérimental (2).

## 2 - Classes de réservoirs.

- Stockages mobiles

Ce type de réservoirs peut être soumis à des agressions environnementales particulièrement sévères en cas d'accident : choc, écrasement, incendie, etc. et les protections annexes que l'on peut placer autour sont forcément limitées par les contraintes de poids et d'encombrement ; ils doivent donc être d'une grande robustesse. En outre, dans le cas d'un transport de personnes ils sont au voisinage immédiat des passagers - typiquement sur le toit pour un bus, sous les sièges arrières pour une voiture particulière - ce qui impose toute une gamme d'autres précautions et dispositifs de sécurité.

La masse d'hydrogène spécifiée par les constructeurs est typiquement de 4 à 5 kg pour un véhicule léger équipé d'une pile à combustible, ce qui permet une autonomie de 500 à 600 km. Dans le cas de véhicules de type poids lourds, la masse d'hydrogène à stocker à bord sera 5 à 10 fois plus importante, voire plus encore si une relativement faible densité du réseau de stations conduit à augmenter le stockage à bord. Avec une masse d'hydrogène de l'ordre de 70 kg, soit 1m<sup>3</sup> sous forme liquide, la compétition entre stockage liquide et stockage gazeux sera sans doute assez indécise. Le premier prototype de ce type de réservoir (70 MPa) a été développé en France, au CEA/DAM à partir de 1992, dans le cadre du programme national VPE/PAC (*Véhicule Propre et Econome/Pile à Combustible*) (cf Fig.1). Il était constitué d'un liner en alliage d'aluminium et d'un enroulement filamentaire en fibres de carbone. Il avait subi avec succès tous les tests de bon comportement jusqu'à 180 MPa (coefficient de sécurité de 2,5).



**Figure 1 - Le premier réservoir composite 70 MPa développé au CEA (1993)**

Dans la catégorie des stockages mobiles, il faut incorporer la famille des réservoirs destinés au transport de l'hydrogène. Ce transport est actuellement réalisé avec des bouteilles en acier renfermant de l'hydrogène à 20 MPa. Fin 2013, le groupe *Linde* a annoncé le développement (avec la société *Wystrach*) de réservoirs composite stockant de l'hydrogène sous 50 MPa, qui lui permettront de mettre en œuvre des remorques capables de transporter jusqu'à 1 100 kg d'hydrogène.

- Stockages stationnaires

Afin de permettre un remplissage rapide du réservoir des véhicules se présentant « à la pompe » - moins de 5 minutes pour un véhicule léger et moins de 30mn pour un bus - les stations de

remplissage doivent disposer d'unités de stockage de grande capacité. Pour permettre cela, un stockage à pression intermédiaire, voire à plus haute pression, et des pompes de transfert sont la solution la plus adaptée. La maîtrise de l'échauffement, associée au remplissage rapide, constitue un élément à contrôler de manière précise de manière à éliminer des surpressions au niveau du réservoir. Utiliser un gaz refroidi pour le stockage stationnaire permet de réduire considérablement ce phénomène. Dans ces conditions, le transfert de 5 kg d'hydrogène sous 700 bars, ne dure que 4 à 6 minutes.

A plus grande échelle, plusieurs études ont été lancées ces dernières années sur le stockage de grandes quantités d'hydrogène dans des réservoirs naturels souterrains destinés à être couplés à une sources de production d'hydrogène en masse ( champ d'éoliennes ou réacteur nucléaire).

Ainsi:

- le projet **HyFrance3**<sup>1</sup> (déclinaison française du projet européen *HyWays*) mené par l'Ademe de 2009 à 2011,
- le projet européen **HyUnder**<sup>2</sup> qui s'est achevé en juin 2014.
- une étude de faisabilité anglaise sur les solutions de stockage souterrain de longue durée dans des anciens puits de pétrole ou gaz et dans des aquifères, dont les résultats ont été publiés en avril 2016 (9).
- le projet **Underground Sun Storage** coordonné par le RAG (pour Rohöl-Aufsuchungs Aktiengesellschaft, société Autrichienne de pétrole et de gaz) qui a débuté en 2014 et qui s'achève fin 2016.

Ces projets, qui ont pris en compte tous les aspects d'une telle forme de stockage (géologiques, technologiques, réglementaires et économiques) ont démontré la faisabilité d'un tel concept.

### **3 - Architecture type d'un réservoir « Haute Pression »**

Un réservoir type III ou IV comporte successivement, de l'intérieur vers l'extérieur (cf. fig.2):

- Une enveloppe étanche
- Une structure composite travaillante
- Une couche de protection

A l'une au moins des extrémités se trouve une soupape de sécurité qui décharge le réservoir en cas de surpression (incendie) suivie d'une embase qui permet le raccordement avec le circuit d'utilisation.



**Figure 2 – Réservoir composite 70 MPa (700 bars)**

<sup>1</sup> [http://i-tese.cea.fr/files/LettreItese13/MarcheHydrogeneEte2011\\_08\\_03\\_v2-4.pdf](http://i-tese.cea.fr/files/LettreItese13/MarcheHydrogeneEte2011_08_03_v2-4.pdf)

<sup>2</sup> <http://www.hyunder.eu/>

- L'enveloppe étanche (ou liner)

Non seulement l'hydrogène a une forte propension à traverser toutes les parois, mais le composite fibre- résine est généralement plus ou moins poreux, surtout après des cycles répétés de mise en pression. Les hautes pressions envisagées imposent l'utilisation d'un matériau spécifiquement choisi pour son imperméabilité à l'hydrogène. On distingue alors des enveloppes métalliques (type III) ou polymériques (type IV).

Type III : pour ce qui concerne les métaux, acier inoxydable et alliages d'aluminium ont été les plus couramment utilisés jusqu'à ces dernières années, ces derniers présentant moins de sensibilité à la fragilisation par l'hydrogène. En plus de la très bonne résistance à la perméation, un des avantages d'une enveloppe métallique est de simplifier le raccordement avec la ou les embases d'extrémité. Bien que l'enveloppe métallique contribue très faiblement à la tenue mécanique à la pression, elle doit supporter la fatigue due aux cycles répétés de remplissage-vidange (variations de pression et de température). Pour mettre le matériau dont elle est constituée dans les conditions les plus favorables, on soumet le réservoir, en cours de fabrication, à une pression largement supérieure à la pression de service afin de provoquer une déformation plastique de cette enveloppe. Cependant, les problèmes liés à la tenue en fatigue constitue un point faible des réservoirs à haute pression (70 MPa) au contraire des réservoirs 35 MPa pour laquelle cela est déjà assuré. Il est également possible de dimensionner le réservoir en appliquant le concept « *leak before burst* » : si la pression interne augmente au delà de la pression maximale admise<sup>3</sup>, la soupape de sécurité agit et/ou l'enveloppe métallique se déchire "en boutonnière" et perd son étanchéité bien avant la rupture de la structure composite.

Type IV : depuis plusieurs années, les matériaux polymères, comme les polyéthylènes haute densité, font l'objet de nombreuses recherches car plus favorables du point de vue coût, tenue en fatigue et disponibilité industrielle. Par contre ils sont, du moins pour l'instant, moins imperméables à l'hydrogène que les enveloppes métalliques. La conception de ce type de réservoir tient alors compte d'une fuite d'hydrogène et la gère. Diverses voies d'améliorations sont expérimentées pour accroître cette caractéristique (formulation du P.E ou de PA, charges, dépôt d'un film métallique). Les résultats déjà obtenus sont néanmoins compatibles avec les normes ce qui explique la généralisation actuelle de cette technologie.

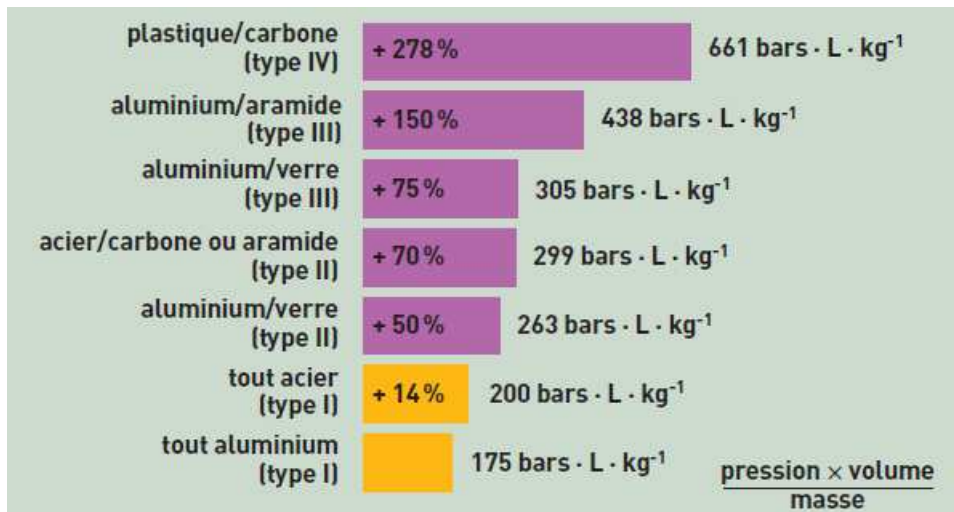
On notera encore que cette enveloppe d'étanchéité sert de mandrin pour le bobinage de la fibre et doit donc être suffisamment rigide ou pouvoir être rigidifiée, par exemple par une légère pression interne ou par un autre procédé, pendant la durée de cette opération tout en conservant une géométrie précise. On notera également que la polymérisation des polymères utilisés comme résine nécessite en général des températures pouvant atteindre 180°C pour les résines thermodurcissables, voire plus pour les résines thermoplastiques. Le choix du polymère de liner ne peut donc s'affranchir de celui du composite.

Les résines les plus utilisées jusqu'à présent sont des thermodurcissables qui exigent de les polymériser dans des fours, à des températures et pendant des durées variables selon la résine choisie et les dimensions de la pièce. D'autres méthodes de polymérisation ont également débouché à l'échelle industrielle (rayonnement électromagnétique, faisceau d'électrons) qui sont plus rapides et présentent des avantages pour la polymérisation de pièces épaisses ou dont les épaisseurs sont fortement variables. Depuis plus d'une quinzaine d'années maintenant, de nombreux travaux visent à développer et industrialiser des résines thermoplastiques pour ce type d'application. Ces résines présenteraient des avantages en particulier vis-à-vis de la tenue dynamique et du recyclage, mais cependant la mise en œuvre de ces composites restent encore un point délicat.

La figure 3 illustre une comparaison entre les divers types de réservoirs.

---

<sup>3</sup> Les réservoirs sont actuellement conçus pour supporter une pression calculée avec un coefficient de sécurité de 2,5. Soit 175 MPa pour un réservoir de pression nominale 70 MPa.



**Figure 3 - Analyse comparée de l'indice de performance (pressionxvolume/masse) des différents types de réservoirs (document CEA)**

- La structure résistante

C'est elle qui reprend la quasi-intégralité des efforts de pression transmis par l'enveloppe étanche et des contraintes qui résultent des forces externes appliquées au réservoir. Avec la recherche de pressions de service toujours plus élevées compatibles avec les lois de compressibilité et de masses toujours plus faibles, la fibre de carbone, grâce à l'amélioration de ses qualités, s'est imposée comme le meilleur choix. Ces dernières années de nouvelles formulations de fibres de verre ont été développées; elles permettraient peut-être d'offrir quelques alternatives plus économiques, si ce n'était le handicap du coefficient de sécurité à retenir, plus important pour le verre que pour le carbone.

Les torons de fibres sont déposés par enroulement filamentaire (cf. Fig. 4) : ce procédé totalement automatisé permet, couche par couche, de choisir les angles d'enroulement. Ce sont ces angles qui vont donner à la structure finale son aptitude à résister au chargement de pression interne. Ainsi dans l'absolu, un angle longitudinal permettrait de bien résister aux efforts axiaux dus aux effets de fond, tandis qu'un angle transversal assurerait la tenue circonférentielle. Le chargement réel de la structure étant complexe, aucune des deux solutions précédentes n'est totalement satisfaisante. De plus, l'angle longitudinal n'étant technologiquement pas réaliste, on lui préfère l'enroulement polaire qui dépend alors du diamètre et de la longueur. Il faut donc choisir l'empilement des couches parmi des orientations diverses qui permettront de profiter de l'anisotropie du composite en garantissant un bon rapport entre masse du réservoir et résistance. Des renforts locaux sont placés en cours de bobinage, en particulier au niveau des embases mais aussi au niveau des brides de fixation de ces réservoirs.



**Figure 4 - L'enroulement filamentaire (document Xperion)**

- La protection externe

Afin de garantir la tenue au choc et une protection aux agressions de l'environnement, en particulier de l'humidité, il vaut mieux protéger la structure de carbone des agressions mécaniques qui pourraient l'endommager. Aussi est-il courant de placer une couche extérieure de fibres de verre (bon marché) et d'une résine qui protégeront efficacement la partie noble de la structure. De plus, cela permet aussi un marquage du réservoir. D'autres solutions peuvent évidemment être utilisées avec, par exemple, un recours à des structures de mousse et de polymère selon les besoins particuliers de chaque utilisateur.

#### **4 - Les performances des stockages mobiles**

L'intérêt d'aller bien au-delà des 35 MPa largement utilisés jusqu'il y a peu de temps, c'est qu'à 70 MPa le volume externe du réservoir est pratiquement le même que pour un stockage à l'état liquide (20K), le volume de l'isolation thermique du second abaissant l'avantage de masse volumique. Ainsi R. Chahine et T.K Bose (3) donnent des valeurs résumées dans le tableau ci-après:

	Diamètre extérieur (mm)	Longueur totale (mm)
<b>H<sub>2</sub> à 34,5 MPa</b>	533	900
<b>H<sub>2</sub> à 69 MPa</b>	478	759
<b>LH<sub>2</sub> à 20K</b>	478	724

*Dimensions pour une masse d'hydrogène égale à 3,6 kg*

Le volume spécifique du stockage ( $\approx 40$  litres/kg H<sub>2</sub>) est une contrainte qui pèse assez fortement sur l'architecture des véhicules légers, du moins tels qu'ils sont conçus aujourd'hui. Cela semble beaucoup moins gênant pour des véhicules utilitaires ou des bus, d'un volume utile de plusieurs mètres cubes.

Le projet intégré européen **STORHY** (2004-2008) a permis de mettre en évidence de récentes avancées. Des réservoirs 70 MPa de type III et IV ont été élaborés spécialement pour l'automobile. Le fabricant italien *Faber* a développé un réservoir de type III de volume interne utile de 39 litres pour une masse de 40 kg, soit un rapport massique d'hydrogène à 70 MPa/masse du réservoir de 3,9%. Le CEA affiche quant à lui un rapport de 5,2% pour un réservoir de type IV et un volume intérieur de 37 litres utiles pour des réservoirs de type IV. Dans le même programme européen, des réservoirs modulaires sous pression ont été étudiés pour tenter d'améliorer les formes extérieures possibles. Ces stockages modulaires sont, sans aucun doute, une des voies possibles pour améliorer la compacité, mais surtout l'adéquation avec la place disponible pour le stockage dans le véhicule. On peut noter que le fabricant américain *Quantum* et le fabricant canadien *Dynetek* ont annoncé, il y a plusieurs années, des performances de laboratoire atteignant 12% grâce à la mise en œuvre de fibres à très haute performance mais très onéreuses.

#### **5 - Les solutions hybrides**

Pour améliorer les performances et profiter des avantages d'autres solutions de stockage, il semble intéressant de combiner plusieurs voies ; ainsi parmi les combinaisons possibles, deux d'entre elles ont été développées :

- Combinaison Haute Pression et Basse Température (HP/BT)

Il est naturellement logique de chercher à combiner haute pression et basse température pour augmenter encore la masse volumique de l'hydrogène chargé. Ainsi, à 200K au lieu de 294K (21°C) le gain est supérieur à 60% à 35 MPa. Il est encore supérieur à 30% à 70 MPa. A cette température de 200K l'isolation thermique est relativement simple et peu encombrante. Des optimisations plus fines - portant sur le gain en masse volumique, la définition de l'isolation, les contraintes opérationnelles, etc....- permettront de définir une plage des températures optimales en fonction des besoins. Le Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) a proposé une démarche (5) qui consiste à concevoir un réservoir capable d'être indifféremment chargé en hydrogène gazeux à haute pression ou en hydrogène liquide à 20K. Le constructeur BMW avait présenté un prototype de ce genre. Cet axe de

recherche pouvait sembler intéressant mais les stations de remplissage devraient être capables d'assurer conjointement une double distribution d'hydrogène liquide et d'hydrogène comprimé ce qui en augmenterait la complexité et donc le coût; de fait, sur les deux centaines de stations en fonctionnement actuellement, aucune ne serait capable d'assurer cette double fonction.

- Combinaison hydrure haute pression

Certains matériaux ont la capacité d'absorber l'hydrogène, c'est en particulier le cas d'intermétalliques formant des hydrures qui sont une des bases du stockage par voie solide. L'utilisation simultanée de haute pression et de ces matériaux est une des voies étudiées dans divers projets de recherche, comme par exemple le projet Européen HYTRAIN (2005-2008). On cherche par exemple à réaliser des réservoirs combinant résistance à la pression et optimisation des échanges thermiques. Toyota a évalué cette solution dans un stockage hybride utilisant des alliages BCC (base Ti-V-Cr) d'une capacité massique de 2,5% avec une pression de 35 MPa à -30°C. Au final c'est 2,2% en masse et donc 50 g/litre qui ont été obtenus, soit une densité volumique supérieure à celle obtenue à 70 MPa (~40g/litre) et voisine d'un stockage à 100 MPa. Aujourd'hui, aucun des trois constructeurs diffusant des véhicules légers à pile à combustible (Hyundai, Toyota, Honda) n'a retenu cette solution.

## **6 - Sûreté et Standards**

La sûreté des dispositifs de stockage a fait l'objet de nombreux développements dans divers pays. Les types de tests qui ont été réalisés par tous les fabricants sont décrits dans le rapport (7).

Les normes qui seront finalement imposées pèseront fortement sur les coûts de développement, de fabrication et d'usage des réservoirs. Elles peuvent aussi avoir un impact sur l'avenir de la filière Haute Pression par rapport à la filière hydrogène liquide à 20K. Ainsi, par exemple, les réservoirs actuels sont dimensionnés pour satisfaire un coefficient de sécurité de 2,5, c'est-à-dire qu'un réservoir 70 MPa doit résister à une pression interne de 187 MPa ; or on peut imaginer que la fiabilisation de ce type de matériel doit pouvoir, dans le futur, induire une baisse de la valeur de ce coefficient de sécurité, ce qui conduira à une baisse du coût de fabrication. De fait, la solution de la filière hydrogène liquide embarquée, est actuellement abandonnée.

Disposer d'un **Standard International** qui précise les règles à respecter pour la conception, la fabrication, les essais et l'utilisation des réservoirs d'hydrogène à haute pression, mais aussi des réservoirs d'hydrogène liquide, ne pourra que favoriser le développement de la filière hydrogène en précisant les règles du jeu pour tout le monde. Actuellement, un projet de l'ISO TC 197 (8) « *technologies de l'hydrogène* » qui est chargé de la normalisation des systèmes et dispositifs pour la production, le stockage, le transport et l'utilisation d'hydrogène travaille à ce projet ; on notera en particulier celui de la norme ISO/DIS 15869.3 « *Hydrogène gazeux et mélanges d'hydrogène gazeux - Réservoirs de carburant pour véhicules terrestre* ». En attendant, les différents groupes d'acteurs se mettent généralement d'accord sur des spécifications dérivées des normes valables pour le gaz naturel, comme le méthane. Citons : ISO/DIS 11119-1 ; 11119-2 ; 11119-3 et ISO/DIS 11623

## **7 – Fabricants de réservoirs « Haute Pression »**

Il existe plusieurs fabricants de réservoirs « haute pression » type III et IV. Les deux premiers ont fourni la majeure partie des constructeurs automobiles ces dix dernières années. On peut citer :

- **Ex-Dynetek**, Canada, qui a été repris par le groupe **LUXFER**:  
[https://www.luxfer.com/products/gas\\_cylinders.asp](https://www.luxfer.com/products/gas_cylinders.asp)
- **Quantum Technologies**, USA, <http://www.quantumtechnologies.com/>
- **Lincoln Composites**, USA, <http://www.hexagonlincoln.com/>
- **Ullit**, France, [www.ullit.com](http://www.ullit.com)
- **EADS Composites Aquitaine**, France (STELIA Aerospace Composites)  
[http://www.composites-aquitaine.com/site/FO/scripts/siteFO\\_contenu.php?lang=FR&noeu\\_id=30](http://www.composites-aquitaine.com/site/FO/scripts/siteFO_contenu.php?lang=FR&noeu_id=30)
- **Xperion Energy and Environment**, Allemagne, <http://www.xperion-energy.de/>
- **Faber**, Italie, <http://www.faber-italy.com/indcyl.htm>
- **Wystrach-GmbH**, Allemagne, <http://www.wystrach-gmbh.de/index.php?id=2&L=2>
- **Mahytec**, France, <http://www.mahytec.com/fr/nos-solutions/>

- **Maruhachi Corp.**, Japon, <http://www.maruhachi.co.jp/en/>
- **Worthington Industries**, USA, <http://worthingtonindustries.com/Products/On-board-Fueling/Hydrogen-Fuel-Tanks>
- **Plastic Omnium**, France, qui, en septembre 2016, a affiché sa volonté de développer ce type de produit - <https://www.plasticomnium.com/fr/>

Nota: certains constructeurs automobiles (comme Toyota) fabriquent désormais leurs propres réservoirs)

## **8 - Références**

- 1- K. Ross, Hydrogen storage: The major technological barrier to the development of hydrogen fuel cell cars, *Vacuum* 80 (2006) 1084–1089
- 2- F. Gasquez, Thèse UFC, 2008
- 3- R. Chahine *et al* Hydrogen storage review, 10<sup>th</sup> Canadian Hydrogen Conference, Quebec-May 2000
- 4- S. Colom *et al*, STORHY : A European Development of Composite Vessels for 70MPa Hydrogen Storage, Proceeding WHEC2008, juin 2008, Brisbane
- 5- S. M. Aceves *et al*, Vehicular storage of hydrogen in insulated pressure vessels Vehicular storage of hydrogen in insulated pressure vessels *International Journal of Hydrogen Energy*, Volume 31(2006), 2274-2283
- 6- Mori, *et al*. *J. Japan Inst. Metals*, 69, 308 (2005).
- 7- J. Chaineaux, C. Devillers et P. Serre-Combe : Sûreté des dispositifs de stockage de l'hydrogène sous haute pression équipant des véhicules routiers – Contrat n° 13461-97-11 Field ISP – Rapport Final (Décembre 2000) - [www.ineris.fr/centredoc/rapfinalv3\\_1.pdf](http://www.ineris.fr/centredoc/rapfinalv3_1.pdf)
- 8- [http://www.iso.org/iso/fr/iso\\_technical\\_committee?commid=54560](http://www.iso.org/iso/fr/iso_technical_committee?commid=54560)
- 9- [International Journal of Hydrogen Energy, Volume 41, Issue 12, 6 April 2016, Pages 5549–5558.](#)