

质子交换膜燃料电池水淹膜干故障诊断方法综述

高楠, 李文杰, 耿占柏, 马彦磊, 陈昊

(长安大学 陕西省交通新能源开发、应用与汽车节能重点实验室, 西安 710064)

摘要: 对质子交换膜燃料电池水淹膜干故障的形成机理和检测方法进行综述。从PEMFC的构造、内部气体传输机理和水传输机理对水淹膜干故障的成因进行分析。对基于模型、数据驱动和可视化直接成像的水淹膜干故障诊断方法进行综述, 深入了解不同诊断方法的技术特点。针对目前各类诊断方法存在的局限与不足之处, 借助电化学阻抗谱分析设备小型便携化、电池模型参数完善和电池故障大数据共享等技术, 提出对非固定动态工况下PEMFC水淹膜干故障预防与诊断的发展方向。

关键词: 水淹膜干故障; 形成机理; 模型; 数据驱动; 可视化

中图分类号: TM911.42 文献标志码: A DOI: 10.3969/j.issn.2095-1469.2024.04.04

A Review of Fault Diagnosis Methods for Flooding and Drying in Proton Exchange Membrane Fuel Cells

GAO Nan, LI Wenjie, GENG Zhanbo, MA Yanlei, CHEN Hao

(Shaanxi Key Laboratory of New Transportation Energy and Automotive Energy Saving, Chang'an University, Xi'an 710064, China)

Abstract: The paper reviews the formation mechanisms and detection methods of flooding and drying faults in proton exchange membrane fuel cells (PEMFCs). Firstly, the causes of flooding and drying faults are analyzed from the perspectives of structure, internal gas transport mechanism and water transport mechanism. Then, the fault detection methods based on modeling, data-driven approaches and direct imaging visualization are comprehensively investigated, and the technical characteristics of these diagnostic methods are deeply analyzed. Finally, considering the limitations and shortcomings of various diagnostic methods, the future improvement and development directions for diagnosing flooding and drying faults in PEMFCs are discussed. This includes utilizing technologies such as miniaturization and portability of electrochemical impedance spectroscopy (EIS) analysis equipment, improving battery model parameters and sharing battery fault big data.

Keywords: flooding and drying fault; formation mechanism; modeling; data-driven; visualization

收稿日期: 2023-11-30 改稿日期: 2024-01-24

基金项目: 交通运输部公路科学研究所运输车辆运行安全技术交通运输行业重点实验室开放基金课题 (FKKT2021-06); 车用氢燃料电池水淹/膜干故障诊断方法研究

参考文献引用格式:

高楠, 李文杰, 耿占柏, 等. 质子交换膜燃料电池水淹膜干故障诊断方法综述[J]. 汽车工程学报, 2024, 14(4): 599-613.

GAO Nan, LI Wenjie, GENG Zhanbo, et al. A Review of Fault Diagnosis Methods for Flooding and Drying in Proton Exchange Membrane Fuel Cells[J]. Chinese Journal of Automotive Engineering, 2024, 14(4): 599-613. (in Chinese)



内燃机工作时受卡诺循环^[1]的限制,其能量转化率大多低于15%。燃料电池是一种直接将燃料的化学能转化为电能的装置,具有很高的能量转化率,一般为40%~60%,如果将余热充分利用,甚至可以高达90%^[2]。同时,燃料电池在工作过程中的产物主要是CO₂和H₂O,是新一代的绿色动力装置。与锂离子动力电池相比,燃料电池补充氢气所需时间较锂离子动力电池充电时间大大缩短,功率密度远远高于动力电池,并且丰田公司发布的燃料电池实车试验,验证了车用燃料电池可承受撞击而不起火爆炸,安全性较动力电池也有优势。因此,燃料电池在21世纪被广泛认为是新能源之星。

在现有的燃料电池中,质子交换膜燃料电池(Proton Exchange Membrane Fuel Cell, PEMFC)因其工作温度低、开关启动性能良好和功率密度大等优点,在实际生活中应用十分广泛。早在19世纪60年代初,美国通用电气公司研发的PEMFC就已应用于空间飞行计划,这是燃料电池的第一次实际应用^[3]。目前,PEMFC已经在航天动力^[4]、车辆运输动力^[5]和便携移动电源^[6]等领域被广泛研究与应用。

PEMFC的构造复杂,主要由电堆模组、进气控制系统、排水系统、水热管理系统、数据采集和控制系统等几部分组成^[7]。在实际使用过程中,PEMFC会发生各种故障,严重的甚至会引发安全事故,因此,对PEMFC的故障诊断是一个重要的研究方向。众多故障中,水淹膜干故障为PEMFC的致命性故障之一,主要发生在电堆模组内部的膜电极(Membrane Electrode Assembly, MEA)组件上。MEA是PEMFC的核心组件,对PEMFC的输出功率、能量密度分布及工作寿命有着决定性的影响。提高MEA性能的关键是在催化粒子的周围形成良好的质子、电子和气体通道。因此,聚合物电解质膜应有一定的含水量,以保证膜良好的质子传导性,否则膜易脱水、皱缩甚至破裂,严重阻碍质子传导(膜干)^[8];但水也不能太多,膜的含水量过多,水就会淹没电极,造成阴极淹没,由于O₂极低的溶解度会增加传质阻力,同时水会堵塞气体扩

散层(Gas Diffusion Layer, GDL)的孔隙,严重阻碍O₂传输,使阴极O₂供应不足,浓差极化增大,从而导致电池性能大幅度下降(水淹)^[9]。水淹膜干故障发生时,电池内阻将会急速升高,同时电压迅速降低,不仅工作效率大幅降低,还会影响电池工作寿命。因此,了解PEMFC中水的迁移机理与水淹膜干故障的原理,对于及时诊断PEMFC水淹膜干故障和保障其正常工作有十分重要的意义。

本文对PEMFC水淹膜干故障的形成机理和故障诊断方法进行详细综述。首先,从PEMFC内部结构及物质转移机理展开,介绍水淹膜干故障发生时内部水的分布,重点阐释水淹膜干故障的成因,并分析水淹膜干故障发生时PEMFC内部外部工作参数的变化。然后,将目前针对PEMFC水淹膜干故障的诊断方法分为基于模型、基于数据驱动和基于外部可视化观测3种方法,并详细介绍3种方法的工作特性。最后,针对当前PEMFC水淹膜干故障诊断实际应用中存在的不足,借助电化学阻抗谱(Electrochemical Impedance Spectroscopy, EIS)分析设备小型便携化、电池模型完善和故障参数数据库共享等技术,展望未来PEMFC故障诊断的研究方向。

1 PEMFC的水淹膜干故障机理分析

PEMFC电堆的主要组件是双极板、MEA组件和垫片,如图1a所示^[10]。MEA主要由聚合物电解质膜(Proton Exchange Membrane, PEM)、GDL和催化剂层(Catalyst Layer, CL)组成,如图1b所示^[10]。在PEMFC工作过程中,其物质输送的过程是:反应物气体H₂和O₂从GDL中的流动通道穿过GDL到达CL,并在铂催化剂的催化下分解成带正电的质子H⁺和带负电的电子e⁻,其中,H⁺通过质子交换膜到达阴极,e⁻则沿外电路通过负载流向阴极并产生电流。同时,O₂通过扩散作用到达阴极催化剂表面,在阴极铂催化剂的作用下,e⁻、H⁺和O₂发生氧还原反应(ORR)生成液态水,生成的液态水则通过GDL的通道流出,并从电池中排出。在

PEMFC运行过程中， H_2 和 O_2 作为反应物，液态水作为生成物，其工作时的有效输送对于PEMFC的正常运行至关重要。GDL是一种多孔介质，会使反应物和生成物向CL的转移效率提高。

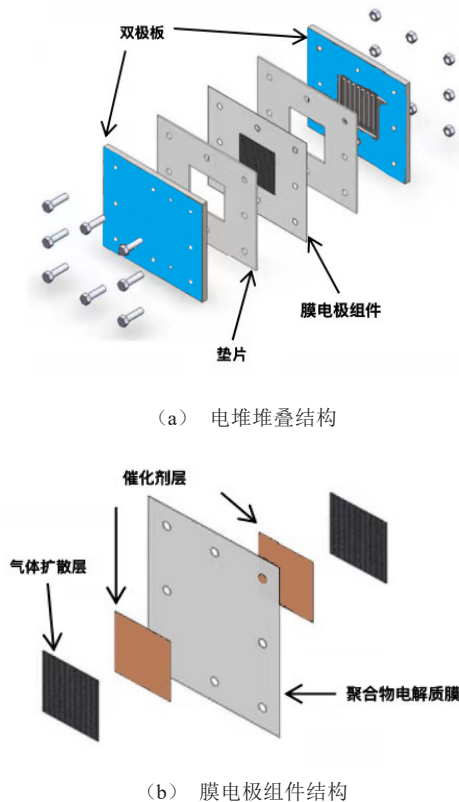


图1 PEMFC电堆结构^[10]

1.1 PEMFC中水的迁移机理

膜上的水是以气态还是液态存在，这取决于水存在点的温度和压力，当水蒸气压力超过饱和蒸气压时，水蒸气由气态转变为液态^[11]，反之，则保持气态。膜中的水含量主要取决于膜中水分子的运动，而水分子在膜中的迁移主要受到以下5个因素的作用^[12]。

(1) 电渗力的拖动作用：这是指阳极的质子穿过膜到阴极的同时将一部分水分子结合带到阴极。因为质子在膜中结合了水分子，所以是以水合质子 $H(H_2O)_n^+$ 的形式存在的($n=1\sim 1.25$ ^[13])，在质子从阳极向阴极迁移时，由于电渗作用的存在，质子会将水分子带到阴极。这就说明当电流越大时，穿过膜的质子所携带的水分子就越多，这会使阴极

的水越多。因此，水分子的迁移速率正比于电流密度和电渗系数。

(2) 阴极向阳极的反扩散作用：在电渗力的拖动作用下，膜的阳极侧的水将被质子携带到阴极，阳极侧的含水量减少；由于电渗作用及水在阴极的生成，将使阴极侧的水含量增加，从而使阴极侧的膜表面上有更高的水含量。此时由于水在膜的阳极和阴极两侧存在浓度差，水将穿过膜从阴极向阳极反扩散，扩散速率正比于浓度梯度。

(3) 反应物气体本身也会携带一部分水分子进入电池，所携带的水分子数量由反应物气体的湿化程度决定，所携带的水分子也会向膜中扩散。

(4) 阴阳两极间的压力梯度造成的水的渗透。若阴阳两极方向运动的水速率相等，则膜中水处于平衡状态；若不加以控制，则会失去平衡，造成膜中含水量或多或少，影响电池运行及性能。

(5) 反应生成的水同样会影响电池内部的水平衡，其生成水的速率正比于电池的工作电流^[14]。

电池中膜的含水量由多种因素相结合而决定，若膜的含水量不能保持在健康范围内，则极有可能诱发水淹膜干故障。

1.2 诱发水淹膜干故障的因素

通过上述对水迁移机理的分析可以看出，凡是影响电渗、扩散和水补给等的因素都将影响水的平衡，即膜的湿度和放电电流密度、电池工作温度以及反应物的湿化程度有着密切的关系。整个燃料电池的反应可以分解为两个半电化学反应，分别在阳极和阴极产生，如图2所示。

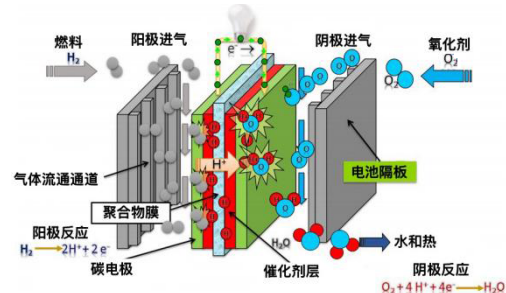


图2 PEMFC基础反应^[15]

放电电流密度既影响水的生成又影响电渗。由电池的工作原理和反应的化学方程式可以看出，

PEMFC 工作电流和电池的产水量之间有一一对应的线性关系,工作电流越大,电池的产水量越大。WANG 等^[16]通过仿真试验分析发现在电流密度不大的情况下,越过膜的水的净流量很低,膜很容易被加热的反应气吹干,出现膜干现象;随着电流密度的提高,产水量增加,电渗系数减小,电池内阻明显增大,出现水淹现象,导致电池工作电压急剧下降。

温度对燃料电池的水平衡有重要的影响。PEMFC 的工作温度极大地影响着电极处的电化学反应活性、膜的湿化和传热传质等。MENNOLA 等^[17]在对 PEMFC 电压损耗的测量中发现,对一般的膜材料来说,在湿度不变的情况下,膜内质子传导率随着温度的升高而提高。AMPHLETT 等^[18]在温度对电池性能的影响的研究中也证实了温度较高时燃料电池的性能更稳定。但是温度升高也会加快膜中水的蒸发,从而增加质子在膜中传输的阻力。由此可见,电池工作温度会影响水在气室的饱和蒸气压,进而影响扩散和水补给。

反应物的湿化程度也会影响扩散及水补给。律翠萍等^[19]的试验表明,阳极增湿程度越大,阳极向阴极迁移的水越多,膜阳极侧水的含量越多,电流密度分布越均匀。MENCH 等^[20]在对 PEMFC 物质传输的相关研究中发现,在电流密度较低的情况下反应气中的液态水对电池性能的提高是有帮助的,但是当电流密度升高后,由于阴极侧反应本身会生成水,再加上从阳极电渗过来的水,从而使过多的水聚集在阴极,造成阴极电极淹没。

无论是电流密度、工作温度还是湿化程度,对水平衡的影响都不是独立的,它们在实际工作过程中共同影响燃料电池中水的平衡状况,因此,不能以单一指标的变化作为依据,需要结合多项指标对水淹膜干故障进行综合诊断。由于发生水淹膜干故障时,压降变化是最直观的指标,所以目前对于 PEMFC 水淹膜干故障诊断,一般引入电池正常工作率 PN 作为具体诊断阈值,再根据 ΔPN 来判定故障为水淹或膜干^[21]。

2 PEMFC 水淹膜干故障诊断方法综述

目前,关于 PEMFC 水淹膜干故障的诊断方法大多都是根据 PEMFC 工作指标的变化来进行诊断,如电压、电路阻抗等。大致可分为基于模型的故障诊断方法、基于数据驱动的故障诊断方法以及基于外部可视化观测的故障诊断方法 3 种^[22]。

基于模型的诊断方法需要对电池堆的内、外部湿度、温度等物理参数进行建模,因其物理模型高度复杂,建模所需要的物理公式及参数也很多。这种方法能真实地模拟 PEMFC 电池堆工作运行时的状态,诊断结果比较准确。基于模型的诊断方法流程如图 3 所示。

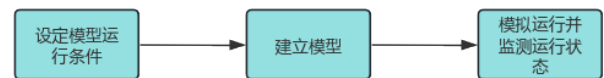


图 3 基于模型的水淹膜干故障诊断流程

基于数据驱动的诊断方法通过对已发生水淹膜干故障的电池堆的故障数据进行高度分析学习,构建诊断算法模型,根据工作参数对 PEMFC 是否发生水淹膜干故障进行诊断,具有较好的实时性和普适性。具体流程如图 4 所示。

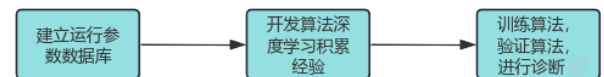


图 4 基于数据驱动的水淹膜干故障诊断流程

基于外部可视化观测的诊断方法目前研究较少,其中通过中子成像、核磁共振成像等方法对 PEMFC 内部水的分布和传输进行直接成像,具有准确、实时等优点,能从原理层面(扩散层堵塞或膜含水量降低)直接观测,从而对 PEMFC 是否发生水淹膜干故障进行直接诊断。下面将分别对 3 种方法进行介绍。

2.1 基于模型的故障诊断方法

基于模型的故障诊断方法通过大量物理公式对 PEMFC 进行建模,进而模拟 PEMFC 工作时的状态,模型不只局限于整体电池堆的模拟,还可以对 MEA 内部孔隙间水的分布流动进行建模,通过膜孔隙间水和质子的流动状态来对 PEMFC 是否发生

水淹膜干故障进行诊断。现有的研究利用等效电路数值模拟^[23-25]的方法，用三维多项的CFD(Computational Fluid Dynamics)在固定的电池工作条件下^[26]、在电池非固定的工作条件下^[27]、固定反应气入口供气速度的条件下^[28]和不同速度及压力的反应气输送的条件下^[29]的方式对PEMFC进行建模。基于模型的故障诊断方法不仅拓宽了对多孔介质中液体运输的理解，而且促进了宏观和微观层面新模型的发展。该算法在模型的运行过程中需要测量多个参数，而且如要采取措施对PEMFC的水管理进行进一步优化，例如优化GDL的结构^[30]和控制并保持PEMFC反应气的流量流速^[31]等，需要增加PEMFC的成本和设备，并使故障的检测复杂化。

2.1.1 物理模型

PEMFC的物理模型是对PEMFC先构建理论模型，然后进行数学描述，并对模型进行计算机程序模拟，准确度高，具有很好的普适性。

FOUQUET等^[32]对电池进行阻抗测量来对PEMFC模型进行参数识别，该方法获得了精确的结果，但只能对单个电池进行水淹膜干故障诊断。RAMOUSSE等^[33]通过对单个电池进行建模，对单个电池的热场和水饱和度进行了讨论。SENA等^[34]和SHAN等^[35]也都解决了单个电池的建模问题。但是，由于单个PEMFC的输出功率很难满足实际应用中的需要，所以PEMFC在实际应用中都是由多个电池堆叠组装而成。对电池堆进行建模时，需要考虑温度的影响，因为温度变化不仅影响PEMFC的内部电压，还可以表征堆叠电池组对外部扰动的动态响应，如负载变化、启动或关闭等。SHAN等^[36-37]克服了以上研究中对单个电池进行建模的局限性，建立了PEMFC电池堆的整体模型。YAN等^[38]的研究表明，温度会影响膜内的水分分布，从而影响整个电池堆的模型。ROWE等^[39]的模型预测了MEA组件内部的温度梯度以及它们对膜水合作用的影响。GRAF等^[40]研究了便携PEMFC在极端温度条件下工作的情况(高温和接近0℃)。SOHN等^[41]通过试验研究了PEMFC堆

叠电池组中单个电池间的电压也存在差异，但这些研究是在恒定温度下进行的，限制了PEMFC的工作条件。PROMISLOW等^[42]利用了简单稳态数学模型对进排气口气体温度的变化进行分析，这一研究被KOH等^[43]考虑到堆叠PEMFC在工作过程中升温的研究工作中得到拓展，并且证明了实际工作状态下自然空气对流无法维持电池工作温度恒定。RAMOUSSE等^[44]基于上述研究，开发了一种PEMFC的三维动态模型，搭建了PEMFC模拟平台，将局部电压下降与整个空气冷却堆的温度分布联系起来，对水淹膜干故障进行诊断及预防。

目前，关于模拟PEMFC内部的水传递的研究中，大多都基于固定工况，限制了PEMFC的运行条件。MENG Hua^[45]和DAS等^[46]已经应用了PEMFC内部水传输模型，但在PEMFC水淹膜干故障诊断时使用的是物理指标，而不是膜孔隙内部的液态水含量。在动态的非固定工况下测量膜内液态水的实际含量是非常困难的，针对此问题，BAKHTIAR等^[47]基于水平衡原理，提出了非固定工况负载条件下PEMFC电池内液态水饱和平衡的解析模型，即PEMFC的输水模型，可用于预测PEMFC水淹膜干故障情况。美国生态环境部还利用该模型进行仿真试验，结果表明，不同负荷工况下PEMFC具有不同的液态水饱和度曲线，这意味着动态负载PEMFC的水淹膜干故障诊断还需要动态输入空气湿度等数据。

2.1.2 等效电路

建立等效电路模型之前，需要找到与等效电路模型相对应的膜电阻和激活电阻，并将其简化为电阻元件后放入等效电路模型中^[48]。由于这些电阻元件在每种水平衡状态下显示出不同的物理参数，所以可以作为判断PEMFC中水平衡状况的依据。同时，这种方法也不需要额外的昂贵设备，只需要简单的信号处理。最早的PEMFC等效电路模型是由LARMINIE^[49]于1994年发表的，如图5所示。BECHERIF等^[48]根据等效电路模型简单化的优点建立了PEMFC的等效电路模型，如图6所示。该模型不仅对电池内部的物理现象进行建模，还考虑

了温度和相对湿度变化对电池的影响,通过仿真试验验证了该模型的可靠性,并推进了 PEMFC 在车辆上应用的进程。

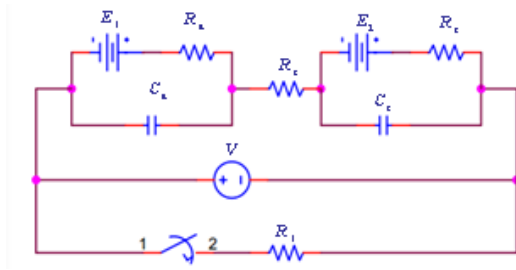


图 5 Larminie 电路模型^[49]

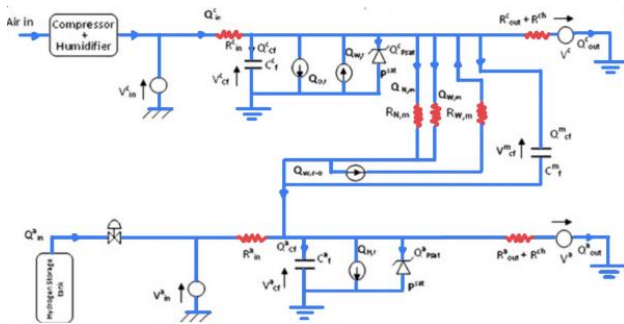


图 6 Becherif 完整电路模型^[48]

在最新的关于 PEMFC 等效电路模型的研究中, MOHAMMADI 等^[50]进行了温度变化对 PEMFC 运行性能影响的研究。他们将研究目标设立为电池堆中的每个单体电池,研究了温度变化对每个单体电池电压输出变化的影响,但是没有将温度变化与电池电流变化相关联。NASCIMENTO 等^[51]使用了 PSCAD/EMTDC 软件建立了 PEMFC 等效电路模型。他们所建立的模型可以密切监测 PEMFC 在负载转换过程中的一切电行为,并且对比试验结果表现出高度的一致性。ATLAM 等^[52]根据电化学能量转换原理开发了一种等效电路模型,模拟仿真 PEMFC 在标准空气压力下工作,得到了“电流-电压”特性,并且该模型能以更少的参数设置让 PEMFC 的参数输出更精确,该研究为 PEMFC 能在最佳状态区间内运行提供了一定参考价值。

建立等效电路模型配合 EIS 测量 PEMFC 运行时的交流阻抗也是一种诊断方法。FOUQUET 等^[32]和 KIM 等^[53]已经将这种方法应用于对 PEMFC 的运行状态的监测,但由于这种方法是基于各种离线的正弦扰动,并且信号处理需要昂贵且笨重的仪

器,所以难以在广泛的商业用途中应用。

SHIN 等^[54]提出了一种基于简化的 Randles 的阶跃响应数据分析,其简化后的电路模型如图 7 所示,可以用于监测 PEMFC 的水淹膜干故障。

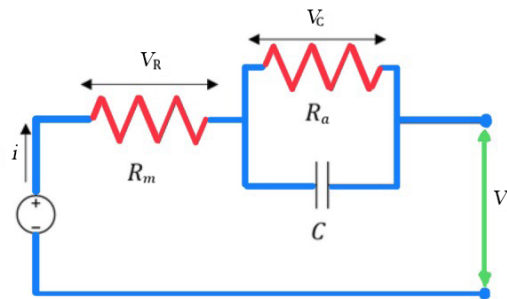


图 7 简化的 Randles 等效电路模型^[54]

LARIBI 等^[55]根据使用算法工具监测系统运行状态的原理,开发了一种理论模型工具,其新颖之处在于通过常相位角元件 (Constant Phase Angle Element, CPE) 转换改进 Randles 等效电路模型,得到可视化分数阶传递函数,进而开发了一种简单快速且能利用分数阶方法监测 PEMFC 水淹膜干的新方法。并将所得结果与试验得到的阻抗谱测量结果与 FOUQUET 所建立的交流阻抗模型^[32]、SADLI 等^[56-57]和 TALEB 等^[58]进行的分数阶 PEMFC 模型参数识别结果进行比较,结果表明,PEMFC 水管理效果突出。

另一方面,将逆变器谐波应用于 PEMFC 的水淹膜干故障诊断的案例仅有 MATHIAS 等^[59]在 2002 年应用于控制 PEMFC 水平衡的专利,后来由 HINAJE 等^[60]通过静态功率变换器对 PEMFC 进行在线诊断的试验中验证该方法可行。DOTELLI 等^[61]提出了另一种模拟三相逆变器谐波测量 PEMFC 的阻抗值,在单个 PEMFC 上进行了试验验证,结果与阻抗谱测量结果一致。DOTELLI 等^[62]还通过低频逆变器谐波响应,测量模拟等效电路中所提供的阻抗值来对诊断 PEMFC 水淹膜干的可能性进行讨论,他们在等效电路模型中将三相或单项逆变器作为电阻元件接入,提出了一种低成本的 PEMFC 内部水管理的诊断算法。在他们所建立的等效电路模型中,检测电路阻抗变化能有效监测 PEMFC 膜干故障情况,但仅检测电路的阻抗变化

无法很好地区别水淹故障，这是因为虽然阻抗测量可以作为诊断膜干的指标，但它不能用于诊断水淹故障，当膜内水化完全时，含水量的进一步增加也不会让阻抗的值有更明显的变化。通过改进算法后，对电路模型同时进行阻抗和压降测量，结合两组数据的变化来对 PEMFC 工作状态进行监测，通过水淹膜干故障阻抗变化曲线和压降变化曲线的不同特征来排除电极极化产生的干扰，从而进行准确诊断。

虽然目前基于等效电路建模来诊断 PEMFC 水淹膜干故障的方法有很多，但是所使用的等效电路模型不仅各不相同，还缺乏对不同模型性能和适用性的全面分析。因此，等效电路模型的发展并没有太大的进展。

2.2 基于数据驱动的故障诊断方法

基于模型的 PEMFC 水淹膜干故障诊断方法需要了解许多其在运行过程中的内部参数，但是由于承担监测任务的仪器大多昂贵而笨重，且 PEMFC 内部水平衡监测非常复杂，往往需要许多内部参数配合，成本难以控制。对于运输应用的 PEMFC，制造商的目标是减少监测和故障诊断中使用的设备数量，降低成本。在这种使用背景下，基于数据驱动的诊断方法，如神经网络、模糊逻辑、人工智能系统等方法被广泛应用^[63]。与基于模型的诊断方法相比，这些方法有快速、精确和简易等优点。基于数据驱动的 PEMFC 故障诊断技术可以确定扩散时间常数、奈奎斯特图^[64]、相对湿度、水化状态、控制空气供应和估计 PEMFC 的剩余寿命，并在一定条件下有相当准确的结果^[15]。

神经网络是 PEMFC 水淹膜干故障诊断最常用的方法之一，假设给定一组输入和输出数据，它就可以利用这些数据来学习和映射非线性系统^[15]。KIM 等^[65]用 Hamming 神经网络，以 PEMFC 测量的电压、电流作为训练和验证数据，诊断了 20 个单体 PEMFC 的健康状态，以创建一个关于 PEMFC 的 Hamming 神经网络。该网络能确定等效电路模型的合适参数，从而检测 PEMFC 水淹膜干故障。SHAO

等^[66]基于反向传播神经网络（Back Propagation Neural Network, BP-ANN）和 PEMFC 动态模型，有效检测 PEMFC 的水淹膜干故障，准确率在 70% 以上。STEINER 等^[67]基于对真实系统输出和模型输出（压降和堆叠电压）的两个残差的比较，来检测 PEMFC 的健康状态。MAMMAR 等^[68]开发的基于自适应神经模糊推理的水传输预测模型对 PEMFC 进行水管理。SAHLI 等^[69-72]和 ABDENEBI 等^[73]利用神经网络对固体氧化物燃料电池进行水管理。MONSAF 等^[74]对螺旋流场中的 PEMFC 进行数值分析。HADDAD 等^[75]对不同进气温度中的 PEMFC 进行水管理。借助于 MAMMAR 等^[76]对 PEMFC 的 EIS 分析结果，LARIBI 等^[15]提出了一种基于神经网络阻抗模型^[77]的 PEMFC 健康状态检测方法，其阻抗模型如图 8 所示。该模型给出了较好的 MEA 电阻率，且所需参数较少，试验结果表明该方法快速精确。

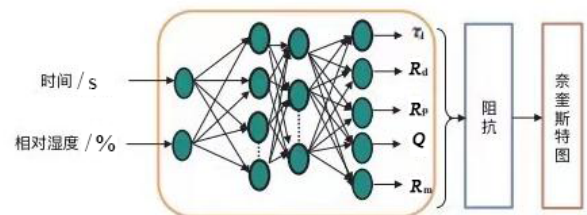


图 8 数据训练神经网络^[77]

KHAN 等^[78]基于量子闪电搜索算法开发的半经验模型，根据含水量标准诊断了 PEMFC 的水淹膜干故障，并使用阻抗谱对该模型进行了验证。此外，人工智能作为一种诊断工具也被应用于 PEMFC 水淹膜干故障诊断领域，以提高诊断性能和稳定性。这种方法通过人工智能对故障数据或者故障时的物理参数变化进行大量学习，建立经验模型，克服了基于模型的故障诊断算法的局限性。这些经验模型代表了实际 PEMFC 内部的物理现象，并且可以近似还原整个物理过程的复杂变化^[65]。KIM 等^[79]利用深度学习开发了一种在 PEMFC 水淹膜干故障发生之前进行预测的系统，通过试验分析了 PEMFC 发生水淹膜干故障时的特征，使用长短期记忆和卷积神经网络相结合的方法增强预诊断系统性能。

模糊逻辑是一种分类技术，通过模仿人类推理来处理系统的不确定性。模糊逻辑将模糊数据分成几个组，每一组都是一个模糊集，其元素与一个隶属函数相关联。隶属函数可以是梯形的、线性的或弯曲的^[15]。基于模糊逻辑的 PEMFC 水淹膜干故障诊断算法，考虑了膜内相对湿度、气体动力学和输出电压等参数。通过负荷和空气中存在的水分的变化，确定该模型是否发生了水淹膜干故障。MAMMAR 等^[80] 基于电化学基本定律，并结合了 EI-NAGGAR 等^[81] 在 2009 年研究模型的经验，利用模糊逻辑推理的方法对 PEMFC 水淹膜干故障进行诊断。RUBIO 等^[82] 对他们另一小组^[83] 所研究的 PEMFC 含水量实时定性模型进行扩展，提出了一种模糊模型，优化了 PEMFC 的电响应，从而优化其运行过程，允许实时确定其质子交换膜的水淹膜干程度，并对气体的压力和湿度做出控制决策。试验结果表明，对 PEMFC 水淹膜干故障的识别满足要求且没有重叠的结果。故障决策树如图 9 所示。

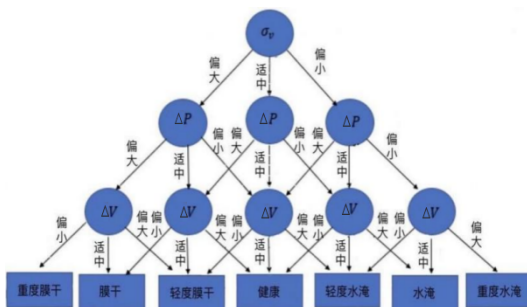


图9 故障决策树

2.3 基于外部可视化观测的故障诊断方法

中子成像技术可以作为一种非侵入性方法来分析 PEMFC 水分布^[84-85]。由于中子对水中氢原子具有敏感性，所以中子成像是一种相对较新的、有吸引力的技术，可以用于量化 PEMFC 中水的分布。由于中子束可以穿透 PEMFC 组件，所以该技术可以直观呈现出在整个 PEMFC 结构中的液态水，包括 GDL 和 CL。该技术可以在正常情况下诊断带电 PEMFC 水淹膜干故障，并且操作不受限制^[86]。目前，中子成像技术日趋成熟，主要用于探索多孔介质中两相通量对质量运输损失的影响。

ZLOBINSKI^[87] 的研究表明，在大多数 GDL 中，质量运输损失随着 PEMFC 电流密度和操作压力的增加而增加，与两相流无关；GDL 中的两相流只存在于毛细管流动，最多的质量运输损失的来源是 GDL 和 CL 之间的界面^[87]。LEE 等^[88] 采用相同的技术，考察了温度对两相流的影响，结果表明，随着温度的升高，GDL 的饱和度降低。在高温下，电流密度对阳极 GDL 的饱和度也有影响，因此，在较高温度下操作才能实现最佳的水平衡。ARIF 等^[89] 的研究表明，利用中子成像技术可以得到电池内部水的分布情况。PARK 等^[86] 采用特殊设计的蛇形流道 PEMFC，使电池在不同工况下进行了动态性能试验，并用中子成像技术观测了电池中的水分布情况，分析了电池工作温度和压降对电池水管理的影响，观测结果经试验测量验证吻合度较高。尽管许多中子成像技术在二维层面已经足以诊断 PEMFC 水淹膜干故障，但二维的图像呈现实时性较差且分层较多，故障诊断效率较低。TANG 等^[90] 根据二维中子成像的一系列局限性，研究了基于层析方法^[91] 的三维中子成像技术，这项技术通过对二维成像技术局限性的扩展，可以对任意层截面的成像进行观测，成像效果如图 10 所示，实现对故障部分的精准定位，并且大幅提高了成像质量，利用该方法进行水淹膜干故障诊断效率较二维方法大大提高。

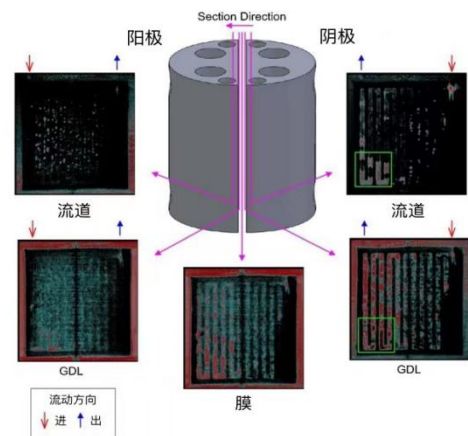
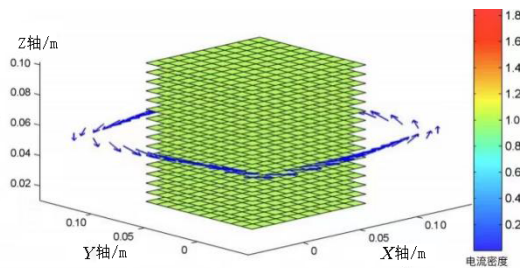


图10 流道某层增强图像^[90]

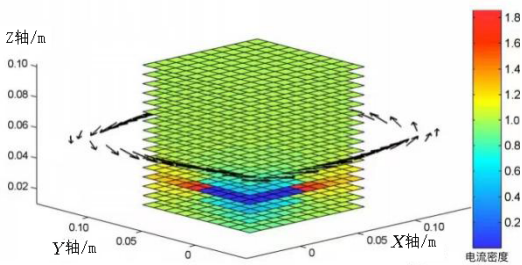
另一项技术是磁共振成像技术，适用性非常高，能三维成像并可视化电池中不透明结构内部的

水分布情况^[92]。FEINDEL 等^[93] 为了获得最佳的磁共振成像图，利用了专门设计的非商业 PEMFC 进行研究，发现电池内部的导电成分会吸收图像生成时所需的入射射频能量，并且强磁性材料会使成像图产生伪影。MINARD 等^[94] 利用这项技术直观地展示 PEMFC 膜中的水含量，并将电池输出电压与其运行条件联系起来。除此之外，LE 等^[95] 还基于电流密度-磁场之间的关系对 PEMFC 周围的磁场进行了测量，获得了可以确定电池堆是否健康的磁场图像，如图 11 所示，并以此诊断 PEMFC 电池堆发生水淹膜干的故障。

综上所述，3 种 PEMFC 水淹膜干故障诊断方法的对比见表 1。



(a) 健康的 PEMFC 电池堆磁场图像



(b) 第 4 层角落发生异常的 PEMFC 电池堆磁场图像

图 11 电流密度及磁场分布

3 展望

本文分别介绍了基于模型、基于数据驱动和基于可视化观测的 PEMFC 水淹膜干故障诊断方法，下面根据这 3 种不同原理的水淹膜干故障诊断方法目前所展现出来的局限性，提出对未来的展望。

总的来说，目前对 PEMFC 进行的大量研究中，电池温度一直保持在相对较高的温度，一般在 80 °C 左右。电池温度可以对 PEMFC 的水管理产生重大影响，从而影响其性能。因此，在实际应用中需要考虑 PEMFC 在不同温度时的工作情况。ISLAM 等^[96] 研究了在 60~80 °C 下 PEMFC 的工作情况，而 ASSAF 等^[97] 所研究的太阳能-氢联产热电系统模型中模拟了 60~65 °C 下 PEMFC 的运行，但对更低温度下 PEMFC 运行情况的研究很少。对于不同使用场景中，例如商用 PEMFC 或以 PEMFC 为动力的车辆运行时，启动温度大多低于 60 °C，并且 PEMFC 在低温时的水管理本身就是一大难题。因此，研究不同的工作温度，尤其是低温对 PEMFC 运行参数的影响，可以积累更多应用场景下 PEMFC 运行时水管理的经验。

对于 PEMFC 水淹膜干故障的预测也是未来的研究方向之一。现有研究对于短期内即将发生的水淹膜干故障预测具有较高的准确性，但是随着预测周期的增加，准确性大大降低^[72]。延长 PEMFC 水淹膜干故障的预测时间能更好地保证 PEMFC 的健康运行，延长其工作寿命。目前，基于 PEMFC 的内部水传输模型仍不够完善，如果能在模型中添加更多运行参数，例如动态输入空气湿度、温度等，

表 1 PEMFC 水淹膜干故障诊断方法对比

PEMFC 水淹膜干故障诊断方法	优点	缺点
基于模型	诊断方法稳定性好；诊断结果精确度高；可以输出较多电池内部状态和参数信息	物理模型高度复杂；依赖模型的精度；运算要求较高；完善模型所涉及的参数增加难度较大；模型输出受残差和数据计算测量的不确定性影响
基于数据驱动	不需要高度精确的电池模型；可以实时监测电池内部状态；易于实现；计算量较小；可以自我学习更新诊断数据	存在诊断结果重合，精确性有待提高；需要高度分析故障数据以建立故障数据库；不同种类的 PEMFC 需要建立不同的故障数据库
基于可视化观测	不需要准确的电池模型；检测准确性较高；可应用于在线检测；可以对故障部位实现精准定位；故障发生可直接观测	需要添加额外的外部设备提高成本；所添加的设备大都比较笨重；应用场景比较局限

就有望实现更早的水淹膜干故障预测。

大多数基于模型的故障诊断方法都是要在给定工况下进行的,虽然可以在给定多种工况下进行模拟,但是在实际使用的过程中,工况的不确定性对于 PEMFC 的水淹膜干故障诊断也是一种挑战。对环境工况数据进行动态输入,以匹配模型运行,才能更好地模拟实际应用中 PEMFC 的运行状态,提升 PEMFC 在实际工况下水淹膜干故障诊断的准确性。

基于数据驱动的故障诊断方法在实际应用之前,需要经过大量的数据学习分析,积累故障经验。对于不同种类的 PEMFC 电池堆来说,需要学习的经验数据也不同,同一种故障诊断方法也需要不断学习新的 PEMFC 设备的故障数据来累积经验。对于 PEMFC 电池堆,建立统一的故障数据库,将不同型号的 PEMFC 经验数据共享,可以大大节约诊断方法前期的准备时间和成本,这就需要将信息共享和数据库建设等技术融入水淹膜干故障诊断算法。

由于电池堆是由多个单体电池组成,对诊断过程中的故障单体电池快速、精准定位也是未来重要的研究方向。通过三维立体模型,把 PEMFC 电池堆细化为若干个单体电池节点组成的整体,再对电池堆添加红外线成像,将每个单体电池节点的温度直观地表示在三维立体模型上,结合区域划分的手段对 PEMFC 电池堆中不同区域的单体电池节点进

行动态温度数据输入,不仅可以提高 PEMFC 水淹膜干故障诊断的准确性,还可以精确定位故障区域,提升故障诊断时的工作效率。

在诊断过程中,EIS 作为一种诊断 PEMFC 水淹膜干故障的可靠工具,其使用场景大多数还是仅存在于实验室中。利用 EIS 进行阻抗测量,其设备不仅大而笨重,而且设备成本高昂,难以做到便携使用。未来对 EIS 进行小型化、便携化的改进会极大提升 PEMFC 水淹膜干故障检测系统的性能。

4 总结

水淹膜干故障是 PEMFC 使用过程中对其安全性威胁最大的故障之一,研究 PEMFC 水淹膜干故障的机理特性及其诊断方法对 PEMFC 的安全使用具有重要意义。本文针对 PEMFC 水淹膜干故障形成机理及诊断方法进行综合分析。首先,通过对水淹膜干故障机理特性的阐述,深入分析了 PEMFC 的构造、内部气体传输和水传输等因素对 PEMFC 发生水淹膜干故障的影响。然后,介绍 PEMFC 水淹膜干故障的诊断方法,对基于模型、基于数据驱动与基于外部可视化观测的 3 种故障检测方法进行详细说明,分析各种方法的特点及应用。最后,借助 EIS 分析设备小型便携化、电池模型参数完善和电池故障大数据共享等技术,针对动态的非固定工况下工作的 PEMFC,提出了改善水淹膜干故障预测诊断效率和准确性的有效措施。

参考文献 (References)

- [1] 《中国大百科全书》总编委会.中国大百科全书(1-32)(第2版)(精)[M].北京:中国大百科全书出版社,2012. General Editorial Board of the *Encyclopedia of China*. *Encyclopedia of China* (1-32) (Distillation) [M]. 2nd ed. Beijing: Encyclopedia of China Publishing House, 2012. (in Chinese)
- [2] O'HAYRE R, 车硕源, COLELLA W, 等. 燃料电池基础 [M]. 北京: 电子工业出版社, 2007. O'HAYRE R, CHE Shuoyuan, COLELLA W, et al. *Fuel Cell Fundamentals* [M]. Beijing: Publishing House of Electronics Industry, 2007. (in Chinese)
- [3] 张云河, 李新海, 邓凌峰, 等. 质子交换膜燃料电池的研究与应用进展[J]. 材料导报, 2004(7): 41-44. ZHANG Yunhe, LI Xinhai, DENG Lingfeng, et al. Progress in the Research and Applications of Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. *Materials Reports*, 2004(7): 41-44. (in Chinese)
- [4] 杨明明, 张利国. 燃料电池飞机动力系统技术概述[J]. 科技创新导报, 2014(32): 96-97. YANG Mingming, ZHANG Ligu. Overview of Fuel Cell Aircraft Power System Technology [J]. *Science and Technology Innovation Herald*, 2014 (32) : 96-97. (in Chinese)
- [5] 常国峰, 李玉洋, 季运康. 燃料电池汽车动力系统综合

- 测试环境舱的氢安全设计[J].实验技术与管理,2020,37(4):280-282,287.
- CHANG Guofeng, LI Yuyang, JI Yunkang. Hydrogen Safety Design of Integrated Test Environmental Chamber for Fuel Cell Vehicle Power System [J]. Experimental Technology and Management, 2020, 37(4): 280-282, 287.(in Chinese)
- [6] 阮喻,沈卫东,杜明磊,等.便携式PEMFC移动电源系统的设计与研究[J].电源技术,2004,28(3):141-145.
- RUAN Yu, SHEN Weidong, DU Minglei, et al. Design and Research of Portable PEMFC Movable Power System [J]. Chinese Journal of Power Sources, 2004, 28(3): 141-145.(in Chinese)
- [7] 陈维荣,刘嘉蔚,李奇,等.质子交换膜燃料电池故障诊断方法综述及展望[J].中国电机工程学报,2017,37(16):4712-4721,4896.
- CHEN Weirong, LIU Jiawei, LI Qi, et al. Review and Prospect of Fault Diagnosis Methods for Proton Exchange Membrane Fuel Cell [J]. Proceedings of the CSEE, 2017, 37(16): 4712-4721, 4896.(in Chinese)
- [8] JI Mengbo, WEI Zidong. A Review of Water Management in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells [J]. Energies, 2009, 2(4): 1057-1106.
- [9] 胡鸣若,朱新坚,顾安忠,等.质子交换膜燃料电池的水热管理[J].电池,2003,33(4):258-260.
- HU Mingruo, ZHU Xinjian, GU Anzhong, et al. Water and Heat Management Problems in PEM Fuel Cell [J]. Battery Bimonthly, 2003, 33(4): 258-260.(in Chinese)
- [10] REZA O, SHABANT B. Gas Diffusion Layer Modifications and Treatments for Improving the Performance of Proton Exchange Membrane Fuel Cells and Electrolysers: A Review [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(47): 28515-28536.
- [11] SRIDHAR P, PERUMAL R, RAJALAKSHMI N. Humidification Studies on Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell [J]. Journal of Power Sources, 2001, 101(1): 72-78.
- [12] CHOI K H, PECK D H, KIM C S, et al. Water Transport in Polymer Membranes for PEMFC [J]. Journal of Power Sources, 2000, 86(1-2): 197-201.
- [13] 王林山,李瑛.燃料电池(第2版)[M].北京:冶金工业出版社,2005.
- WANG Linshan, LI Ying. Fuel Cells [M]. 2nd ed. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2005.(in Chinese)
- [14] CHEN Liang, LIN Rui, TANG Shenghao, et al. Structural Design of Gas Diffusion Layer for Proton Exchange Membrane Fuel Cell at Varying Humidification [J]. Journal of Power Sources, 2020, 467: 228355.1-228355.9.
- [15] LARIBI S, MAMMAR K, SAHLI Y, et al. Analysis and Diagnosis of PEM Fuel Cell Failure Modes (Flooding & Drying) Across the Physical Parameters of Electrochemical Impedance Model: Using Neural Networks Method [J]. Sustainable Energy Technologies & Assessments, 2019, 34: 35-42.
- [16] WANG Z H, WANG C Y, CHEN K S. Two-Phase Flow and Transport in the Air Cathode of Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Journal of Power Sources, 2001, 94(1): 40-50.
- [17] MENNOLA T, MIKKOLA M, NOPONEN M, et al. Measurement of Ohmic Voltage Losses in Individual Cells of a PEMFC Stack [J]. Journal of Power Sources, 2002, 112(1): 261-272.
- [18] AMPHLETT J C, PEPPEY B A, HALLIOP E. The Effect of Anode Flow Characteristics and Temperature on the Performance of a Direct Methanol Fuel Cell [J]. Journal of Power Sources, 2001, 96(1): 204-213.
- [19] 律翠萍,叶芳,郭航,等.质子交换膜燃料电池的水热管理[J].节能,2005(8):6-10.
- LYU Cuiping, YE Fang, GUO Hang, et al. Water and Heat Management of Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Energy Conservation, 2005(8): 6-10.(in Chinese)
- [20] MENCH M M, WANG C Y, THYNELL S T. An Introduction to Fuel Cells and Related Transport Phenomena [J]. International Journal of Transport Phenomena, 2001, 3: 151-176.
- [21] 郭家兴,朱新坚,曹广益.质子交换膜燃料电池故障诊断[J].电源技术,2008,32(8):528-531.
- GUO Jiaying, ZHU Xinjian, CAO Guangyi. Fault Diagnosis of PEMFC [J]. Chinese Journal of Power Sources, 2008, 32(8): 528-531.(in Chinese)
- [22] 张雪霞,蒋宇,孙腾飞,等.质子交换膜燃料电池水淹和膜干故障诊断研究综述[J].西南交通大学学报,2020,55(4):828-838,864.
- ZHANG Xuexia, JIANG Yu, SUN Tengfei, et al. Review on Fault Diagnosis for Flooding and Drying in Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Journal of Transportation, 2020, 55(4): 828-838, 864.(in Chinese)
- [23] AL-HADEETHI O Q S. Numerical Investigation of the Effect of Operating Temperature and Relative Humidity on the PEM Fuel Cell Performance [D]. Karabuk: Karabuk University, 2020.
- [24] LEE N W, KIM Y S, KIM M, et al. Numerical Analysis on the Effect of Voltage Change on Removing Condensed Water Inside the GDL of a PEM Fuel Cell [J]. Journal of

- Mechanical Science and Technology, 2016, 30: 4383-4390.
- [25] JARAUTA A, RYZHAKOV P, SECANELL M, et al. Numerical Study of Droplet Dynamics in a Polymer Electrolyte Fuel Cell Gas Channel Using an Embedded Eulerian-Lagrangian Approach [J]. Journal of Power Sources, 2016, 323: 201-212.
- [26] ZHANG Guobin, JIAO Kui. Multi-Phase Models for Water and Thermal Management of Proton Exchange Membrane Fuel Cell: A Review [J]. Journal of Power Sources, 2018, 391: 120-133.
- [27] KHAZAEI I. Experimental Investigation and Numerical Comparison of the Performance of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell at Different Channel Geometry [J]. Heat and Mass Transfer, 2015, 51: 1177-1187.
- [28] ASHRAFI M, SHAMS M, BOZORGNEZHAD A, et al. Simulation and Experimental Validation of Droplet Dynamics in Microchannels of PEM Fuel Cells [J]. Heat and Mass Transfer, 2016, 52: 2671-2686.
- [29] GAO Fei, KABALO M, RYLKO M S, et al. Fuel Cell System [M]//Power Electronics for Renewable and Distributed Energy Systems: A Sourcebook of Topologies, Control and Integration. Heidelberg: Springer, 2013: 185-234.
- [30] JEON D H. Effect of Gas Diffusion Layer Thickness on Liquid Water Transport Characteristics in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells [J]. Journal of Power Sources, 2020, 475: 228578.1-228578.10.
- [31] GHOLIZADEH M, GHAZIKHANI M, KHAZAEI I. Experimental Study of Humidity Changes on the Performance of an Elliptical Single Four-Channel PEM Fuel Cell [J]. Heat and Mass Transfer, 2017, 53: 233-239.
- [32] FOUQUET N, DOULET C, NOUILLANT C J J, et al. Model Based PEM Fuel Cell State-of-Health Monitoring via AC Impedance Measurements [J]. Journal of Power Sources, 2006, 159(2): 905-913.
- [33] RAMOUSSE J, DIDIERJEAN S, LOTTIN O, et al. Thermal Fields and Saturation Discussion in a PEMFC Single Cell [C]//Hydrogen and Fuel Cells 2007 International Conference and Trade Show: International Partnerships for Global Energy Solutions, Apr. 29-May 2, 2007, Vancouver, BC Canada. 2007: 470-481.
- [34] SENA D R, TICIANELLI E A, PAGANIN V A, et al. Effect of Water Transport in a PEFC at Low Temperatures Operating with Dry Hydrogen [J]. Journal of Electroanalytical Chemistry, 1999, 477(2): 164-170.
- [35] SHAN Y, CHOE S Y. A High Dynamic PEM Fuel Cell Model with Temperature Effects [J]. Journal of Power Sources, 2005, 145(1): 30-39.
- [36] SHAN Y, CHOE S Y, CHOI S H. Unsteady 2D PEM Fuel Cell Modeling for a Stack Emphasizing Thermal Effects [J]. Journal of Power Sources, 2007, 165(1): 196-209.
- [37] SHAN Y, CHOE S Y. Modeling and Simulation of a PEM Fuel Cell Stack Considering Temperature Effects [J]. Journal of Power Sources, 2006, 158(1): 274-286.
- [38] YAN W M, CHEN F, WU H Y, et al. Analysis of Thermal and Water Management with Temperature-Dependent Diffusion Effects in Membrane of Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Journal of Power Sources, 2004, 129(2): 127-137.
- [39] ROWE A, LI Xianguo. Mathematical Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Journal of Power Sources, 2001, 102(1-2): 82-96.
- [40] GRAF C, VATH A, NICOLOSO N. Modeling of the Heat Transfer in a Portable PEFC System Within Matlab-Simulink [J]. Journal of Power Sources, 2006, 155(1): 52-59.
- [41] SOHN Y J, PARK G G, YANG T H, et al. Operating Characteristics of an Air-Cooling PEMFC for Portable Applications [J]. Journal of Power Sources, 2005, 145(2): 604-609.
- [42] PROMISLOW K, WETTON B. A Simple, Mathematical Model of Thermal Coupling in Fuel Cell Stacks [J]. Journal of Power Sources, 2005, 150: 129-135.
- [43] KOH J H, HSU A T, AKAY H U, et al. Analysis of Overall Heat Balance in Self-Heated Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells for Temperature Predictions [J]. Journal of Power Sources, 2005, 144(1): 122-128.
- [44] RAMOUSSE J, ADZAKPA K P, DUBÉ Y, et al. Local Voltage Degradations (Drying and Flooding) Analysis Through 3D Stack Thermal Modeling [J]. Journal of Fuel Cell Science and Technology, 2010, 7(4): 041006.1-041006.10.
- [45] MENG Hua. Numerical Studies of Liquid Water Behaviors in PEM Fuel Cell Cathode Considering Transport Across Different Porous Layers [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2010, 35(11): 5569-5579.
- [46] DAS P K, LI X, LIU Z S. Analysis of Liquid Water Transport in Cathode Catalyst Layer of PEM Fuel Cells [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2010, 35(6): 2403-2416.
- [47] BAKHTIAR A, KIM Y B, YOU J K, et al. A Model and Simulation of Cathode Flooding and Drying on Unsteady Proton Exchange Membrane Fuel Cell [J]. Journal of

- Central South University, 2012, 19: 2572–2577.
- [48] BECHERIF M, HISSEL D, GAAGAT S, et al. Electrical Equivalent Model of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell with Experimental Validation[J]. *Renewable Energy*, 2011, 36(10): 2582–2588.
- [49] LARMINIE J R J. Current Interrupt Techniques for Circuit Modelling [C]//IEE Colloquium on Electrochemical Measurement, Mar. 17, 1994, London UK. Piscataway NJ:IEEE, c1994: 12/1–12/6.
- [50] MOHAMMADI A, CIRRINCIONE G, DJERDIR A, et al. A Novel Approach for Modeling the Internal Behavior of a PEMFC by Using Electrical Circuits [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018, 43(25): 11539–11549.
- [51] NASCIMENTO A L, YAHYAOU I, FARDIN J F, et al. Modeling and Experimental Validation of a PEM Fuel Cell in Steady and Transient Regimes Using PSCAD/EMTDC Software [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(55): 30870–30881.
- [52] ATLAM Ö, DÜNDAR G. A Practical Equivalent Electrical Circuit Model for Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) Systems [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2021, 46(24): 13230–13239.
- [53] KIM J H, JANG M H, CHOE J S, et al. An Experimental Analysis of the Ripple Current Applied Variable Frequency Characteristic in a Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell [J]. *Journal of Power Electronics*, 2011, 11(1): 82–89.
- [54] SHIN D H, YOO S R, LEE Y H. Real Time Water Contents Measurement Based on Step Response for PEM Fuel Cell [J]. *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing-Green Technology*, 2019, 6: 883–892.
- [55] LARIBI S, MAMMAR K, ARAMA F Z, et al. Fractional Order Model for Diagnosis of Flooding and Drying of the Proton Exchange Membrane Fuel Cell [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2021, 46(66): 33287–33299.
- [56] SADLI I, THOUNTHONG P, MARTIN J P, et al. Behaviour of a PEMFC Supplying a Low Voltage Static Converter [J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 156(1): 119–125.
- [57] SADLI I, URBAIN M, HINAJE M, et al. Contributions of Fractional Differentiation to the Modelling of Electric Double Layer Capacitance [J]. *Energy Conversion and Management*, 2010, 51(12): 2993–2999.
- [58] TALEB M A, BÉTHOUX O, GODOY E. Identification of a PEMFC Fractional Order Model [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(2): 1499–1509.
- [59] MATHIAS M F, GROT S A. System and Method for Controlling the Humidity Level of a Fuel Cell: U.S. Patent 6,376,111 [P]. 2002–04–23.
- [60] HINAJE M, SADLI I, MARTIN J P, et al. Online Humidification Diagnosis of a PEMFC Using a Static DC-DC Converter [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2009, 34(6): 2718–2723.
- [61] DOTELLI G, FERRERO R, STAMPINO P G, et al. Inverter Ripple as a Diagnostic Tool for Ohmic Resistance Measurements on PEM Fuel Cells [C]//2013 IEEE International Workshop on Applied Measurements for Power Systems (AMPS), Sept. 25–27, 2013, Aachen, Germany. Piscataway NJ:IEEE, c2013: 156–161.
- [62] DOTELLI G, FERRERO R, STAMPINO P G, et al. Diagnosis of PEM Fuel Cell Drying and Flooding Based on Power Converter Ripple [J]. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 2014, 63(10): 2341–2348.
- [63] RUBIO A, AGILA W. Dynamic Model of Proton Exchange Membrane Fuel Cells: A Critical Review and a Novel Model [C]//2019 8th International Conference on Renewable Energy Research and Applications (ICRERA), Nov. 3–6, 2019, Brasov, Romania. Piscataway NJ: IEEE, c2019: 353–358.
- [64] 胡寿松. 自动控制原理: 第6版 [M]. 北京: 科学出版社, 2013.
- HU Shousong. Principles of Automatic Control [M]. 6th ed. Beijing: Science Press, 2013. (in Chinese)
- [65] KIM J, LEE I, TAK Y, et al. State-of-Health Diagnosis Based on Hamming Neural Network Using Output Voltage Pattern Recognition for a PEM Fuel Cell [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2012, 37(5): 4280–4289.
- [66] SHAO Meng, ZHU Xinjian, CAO Hongfei, et al. An Artificial Neural Network Ensemble Method for Fault Diagnosis of Proton Exchange Membrane Fuel Cell System [J]. *Energy*, 2014, 67: 268–275.
- [67] STEINER N Y, HISSEL D, MOÇOTÉGUY P, et al. Diagnosis of Polymer Electrolyte Fuel Cells Failure Modes (Flooding & Drying out) by Neural Networks Modeling [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2011, 36(4): 3067–3075.
- [68] MAMMAR K, LARIBI S. Application of Adaptive Neuro-Fuzzy Inference System Techniques to Predict Water Activity in Proton Exchange Membrane Fuel Cell [J].

- Journal of Electrochemical Energy Conversion and Storage, 2018, 15(4):041009.1–041009.7.
- [69] SAHLI Y, ZITOUNI B, BEN-MOUSSA H. Solid Oxide Fuel Cell Thermodynamic Study [J]. Çankaya University Journal of Science and Engineering, 2017, 14 (2) : 134–151.
- [70] SAHLI Y, ZITOUNI B, BEN-MOUSSA H. Thermodynamic Optimization of the Solid Oxide Fuel Cell Electric Power [J]. University Politehnica of Bucharest Scientific Bulletin Series B—Chemistry and Materials Science, 2018, 80(2):159–170.
- [71] SAHLI Y, MOUSSA H B, ZITOUNI B. Optimization Study of the Produced Electric Power by SOFCs [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2019, 44(39) : 22445–22454.
- [72] SAHLI Y, ZITOUNI B, BEN MOUSSA H, et al. Three-Dimensional Numerical Study of the Heat Transfer on the Planar Solid Oxide Fuel Cell: Joules Effect [M]//Progress in Clean Energy, Volume 1: Analysis and Modeling. Heidelberg: Springer, 2015:449–461.
- [73] ABDENEBI H, ZITOUNI B, BEN MOUSSA H, et al. Inlet Methane Temperature Effect at a Planar SOFC Thermal Field Under Direct Internal Reforming Condition [M]//Progress in Clean Energy, Volume 2: Novel Systems and Applications. Heidelberg: Springer, 2015: 567–581.
- [74] MONSAF T, HOCINE B M, YUCEF S, et al. Unsteady Three-Dimensional Numerical Study of Mass Transfer in PEM Fuel Cell with Spiral Flow Field [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(2): 1237–1251.
- [75] HADDAD D, OULMI K, BENMOUSSA H, et al. Modeling of Heat Transfer in the PEMFC: Velocity Inlet and Current Density Effect [M]//Progress in Clean Energy, Volume 1: Analysis and Modeling. Heidelberg: Springer, 2015:463–473.
- [76] MAMMAR K, CHAKER A. Flooding and Drying Diagnosis of Proton Exchange Membrane Fuel Cells Using Electrochemical Impedance Spectroscopy Analysis [J]. Journal of Electrical Engineering, 2013, 13 (3) : 147–154.
- [77] LARIBI S, MAMMAR K, HAMOUDA M, et al. Impedance Model for Diagnosis of Water Management in Fuel Cells Using Artificial Neural Networks Methodology [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2016, 41 (38):17093–17101.
- [78] KHAN S S, SHAREEF H, KANDIDAYENI M, et al. Dynamic Semiempirical PEMFC Model for Prognostics and Fault Diagnosis [J]. IEEE Access, 2021, 9: 10217–10227.
- [79] KIM K, KIM J, CHOI H, et al. Pre-diagnosis of Flooding and Drying in Proton Exchange Membrane Fuel Cells by Bagging Ensemble Deep Learning Models Using Long Short-Term Memory and Convolutional Neural Networks [J]. Energy, 2023, 266:126441.1–126441.11.
- [80] MAMMAR K, SAADAOU F, LARIBI S. Design of a PEM Fuel Cell Model for Flooding and Drying Diagnosis Using Fuzzy Logic Clustering [J]. Renewable Energy Focus, 2019, 30:123–130.
- [81] EL-NAGGAR K M, ISMAIL H M, AL-FAHD M. Harmonic Modeling, Analysis, Mitigation of Kuwait EHV Electrical Network [J]. Electrical Engineering, 2009, 91(3):145–152.
- [82] RUBIO G A, AGILA W E. A Fuzzy Model to Manage Water in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells [J]. Processes, 2021, 9(6):904.
- [83] RUBIO A, AGILA W, MIRANDA L, et al. Real-Time Qualitative Model for Estimate Water Content in PEM Fuel Cell [C]//2019 8th International Conference on Renewable Energy Research and Applications (ICRERA), Nov. 3–6, Brasov, Romania. Piscataway NJ: IEEE, c2019: 455–459.
- [84] LI Hui, TANG Yanghua, WANG Zhenwei, et al. A Review of Water Flooding Issues in the Proton Exchange Membrane Fuel Cell [J]. Journal of Power Sources, 2008, 178(1):103–117.
- [85] ZHAO Lei, DAI Haifeng, PEI Fenglai, et al. A Comparative Study of Equivalent Circuit Models for Electro-Chemical Impedance Spectroscopy Analysis of Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Energies, 2022, 15(1):1–16.
- [86] PARK J, LI X, TRAN D, et al. Neutron Imaging Investigation of Liquid Water Distribution in and the Performance of a PEM Fuel Cell [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2008, 33(13):3373–3384.
- [87] ZLOBINSKI M. Investigation of Water and Gas Distribution in Proton Exchange Membrane Water Electrolyzer [D]. Zurich: ETH Zurich, 2021.
- [88] LEE C H, LEE J K, ZHAO B, et al. Temperature-Dependent Gas Accumulation in Polymer Electrolyte Membrane Electrolyzer Porous Transport Layers [J]. Journal of Power Sources, 2020, 446: 227312.1–227312.11.
- [89] ARIF M, HUSSEY D S, JACOBSON D L. Neutron Imaging for the Hydrogen Economy [M]//Neutron

- Imaging and Applications: A Reference for the Imaging Community. Heidelberg: Springer, 2009: 191–207.
- [90] TANG H Y, SANTAMARIA A, KURNIAWAN J, et al. Developing a 3D Neutron Tomography Method for Proton Exchange Membrane Fuel Cells [J]. Journal of Power Sources, 2010, 195(19): 6774–6781.
- [91] ANDERSON I S, MCGREEVY R L, BILHEUX H Z. Neutron Imaging and Applications: A Reference for the Imaging Community [M]. Heidelberg: Springer, 2009.
- [92] BAZYLAK A. Liquid Water Visualization in PEM Fuel Cells: A Review [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2009, 34(9): 3845–3857.
- [93] FEINDEL K W, BERGEN S H, WASYLISHEN R E. The Use of ^1H NMR Microscopy to Study Proton-Exchange Membrane Fuel Cells [J]. ChemPhysChem: A European Journal of Chemical Physics and Physical Chemistry, 2006, 7(1): 67–75.
- [94] MINARD K R, VISWANATHAN V V, MAJORS P D, et al. Magnetic Resonance Imaging (MRI) of PEM Dehydration and Gas Manifold Flooding During Continuous Fuel Cell Operation [J]. Journal of Power Sources, 2006, 161(2): 856–863.
- [95] LE NY M, CHADEBEC O, CAUFFET G, et al. PEMFC Stack Diagnosis Based on External Magnetic Field Measurements [J]. Journal of Applied Electrochemistry, 2015, 45: 667–677.
- [96] ISLAM M R, SHABANI B, ROSENGARTEN G. Nanofluids to Improve the Performance of PEM Fuel Cell Cooling Systems: A Theoretical Approach [J]. Applied Energy, 2016, 178: 660–671.
- [97] ASSAF J, SHABANI B. Transient Simulation Modelling and Energy Performance of a Standalone Solar-Hydrogen Combined Heat and Power System Integrated with Solar-Thermal Collectors [J]. Applied Energy, 2016, 178: 66–77.

作者简介



高楠 (1985–), 男, 河北任丘人, 博士, 讲师, 主要研究方向为新能源汽车和汽车电子控制技术。

Tel: 029–82335517

E-mail: gaonan@chd.edu.cn

通信作者



马彦磊 (1995–), 女, 山西大同人, 博士, 主要研究方向为内燃机代用燃料和新能源汽车。

Tel: 029–82335517

E-mail: 15034204648@163.com