

基于系统优化的质子交换膜燃料电池建模研究综述*

陈家城¹ 周苏²

(1.福州职业技术学院交通工程系,福州 365108;2.同济大学汽车学院,上海 201804)

【欢迎引用】陈家城,周苏.基于系统优化的质子交换膜燃料电池建模研究综述[J].汽车文摘,2024(11):33-41.

【Cite this paper】CHEN J C, ZHOU S. An overview of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Modeling Based on System Optimization[J]. Automotive Digest (Chinese), 2024(11): 33-41.

【摘要】为了分析燃料电池系统输出特性,结合大量参考文献对质子交换膜燃料电池(PEMFC)电堆层级的建模进行综述,梳理了有关质子交换膜燃料电池电堆及系统层级的建模研究现状,总结归纳建模方法和建模目的,阐述了系统建模存在的局限性及发展趋势,对优化PEMFC系统控制策略和输出性能、加快PEMFC工程化运用进程有借鉴意义。

关键词:质子交换膜燃料电池;建模;电堆模型;PEMFC辅助系统模型

中图分类号:TM911.4 文献标志码:A DOI: 10.19822/j.cnki.1671-6329.20240064

An overview of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Modeling Based on System Optimization

Chen Jiacheng¹, Zhou Su²

(1. Department of Traffic Engineering, Fuzhou Polytechnic, Fuzhou, 365108, China; 2. School of Automotive Studies, Tongji University, Shanghai 201804, China)

【Abstract】In order to analyze the output characteristics of the fuel cell system, this paper reviews the modeling of the stack level of Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) based on a large number of references, sorts out the research status of modeling of the proton exchange membrane fuel cell stack and the system level, summarizes the modeling methods and modeling purposes, and expounds the limitations and development trends of system modeling, which has reference significance for optimizing the control strategy and output performance of PEMFC system and accelerating the engineering application process of PEMFC.

Key words: Proton exchange membrane fuel cell (PEMFC), Modeling, Stalk model, PEMFC auxiliary system model

0 引言

随着化石能源的日益枯竭,温室效应、环境污染问题日益严重,世界各国都在大力发展可再生能源。质子交换膜燃料电池(Proton Exchange Membrane Fuel Cell, PEMFC)因在效率、排放、低温启动性等方面有明显优势,被认为是新能源汽车的理想动力源之一^[1],但目前其商业化应用还受到耐久性、可靠性的限制。质子交换膜燃料电池系统是一个涉及电化学域、流体力学域、热力学域等多物理域耦合的复杂非线性系统,其包含燃料电池电堆及氢气供给系统、空气供给系统、热管理系统等辅助系统。燃料电池电堆又由多个

包含质子交换膜(Proton Exchange Membrane, PEM)、催化层(Catalytic Layer, CL)、气体扩散层(Gas Diffusion Layer, GDL)、双极板(Bipolar Plate, BP)等部件组成的单电池。因燃料电池结构紧凑、成本高,采用传统试验的方法对燃料电池开展结构设计、新材料选择、性能优化等研究,存在技术难度大、成本高、用时长的问题。燃料电池建模是利用数值模型模拟燃料电池内部复杂的电化学反应过程,为燃料电池结构设计和控制策略优化提供参考,一直受到众多研究者的青睐^[2]。如使用MATLAB和VB的质子交换膜燃料电池特性参数的仿真软件,可以满足PEMFC特性参数仿真试验的要求^[3]。

*基金项目:福建省中青年骨干教师教育科研项目(JAT220659);2022年度同济大学国内访问学者(F2023001)。

PEMFC膜电极、催化剂、双极板等的材料选择,以及气体扩散层和双极板等的结构设计都会直接影响其物质传输、电化学反应及其内部水热平衡等物理化学特性,为了分析材料、结构、物质传输与分布及其内部电化学反应,科研人员在PEMFC组件层级范围内已经做了大量的研究并取得了丰硕成果,如梳理了氢燃料电池关键材料的研究进展^[4]等。为了推进燃料电池的工程化应用,需要围绕燃料电池堆开展燃料电池系统输出特性分析、系统控制策略和输出性能优化等研究,近年也有越来越多的研究者针对PEMFC电堆层级的相关建模开展研究工作^[5]。

本文选取基于系统优化的PEMFC电堆及系统层级的建模研究进行综述,总结归纳建模方法和建模目的,并对PEMFC系统建模的局限性和发展趋势进行阐述,以期加快PEMFC工程化运用进程。

1 燃料电池电堆模型

1.1 建模方法

根据当前已有燃料电池建模方法,燃料电池机理分析模型主要有机理模型、经验模型和半经验模型3种。

机理模型是基于物理化学方程构建的,能够详细描述模型内部传热传质及电化学反应等过程,主要应用于PEMFC组件层级的建模,用于特性分析、结构优化和新材料开发等场合。其特点是模型精度高,但模型复杂、计算量大^[6]。

经验模型是基于试验数据和预设模型构建的,主要应用于系统控制策略和实时仿真研究,其特点是模型简单、计算参数少,但缺乏模型内部机理特性描述,精度一般^[7]。

半经验模型则是介于机理模型和经验模型之间,在分析模型内部机理的基础上,将一部分解析方程式用经验公式替换,通过参数辨识获得难以确定的参数进行模型构建。其特点是既有描述模型内部机理,模型复杂度又有所简化,一般应用于模型结构优化和系统控制^[8]。

基于系统优化的PEMFC建模一般采用半经验模型,如通过建立PEMFC半经验动力学模型,通过分析多因素对输出特性的影响权重,得到不同电流密度区域的最优参数组合,为提高燃料电池性能和制定控制策略提供理论支持^[9]。

1.2 PEMFC电堆模型

燃料电池电堆模型主要包含电化学模型和水气传输的跨膜运输模型等。

PEMFC电堆模型的输入有负载电流、电堆温度、氢气分压、氧气分压、阴极和阳极相对湿度、阴极和阳极压力、阴极和阳极氮气分压;输出有电堆电压、水传递质量流量、氢气和氮气的跨膜运输摩尔流量。

1.2.1 电堆功率输出模型

电堆功率输出模型为

$$P_{\text{out}} = V_{\text{st}} \times I = N_{\text{cell}} \times V_{\text{cell}} \times I \quad (1)$$

式中: P_{out} 为电堆输出功率, V_{st} 为电堆输出电压, I 是负载电流, N_{cell} 为电堆单体电池片数, V_{cell} 是单电池输出电压。

1.2.1.1 电压经验模型

燃料电池电压模型是综合电堆参数及其系数的物理关系和经验关系来表示。电压模型是跟进系统输入对燃料电池的极化曲线进行预测,表征燃料电池的电化学性能。传统的电压经验模型主要有Srinivasan模型、Kim模型、Lee模型、Mann模型等^[10]。

基于Srinivasan经验模型,目前燃料电池单体电压模型一般可表示为^[11]:

$$E_{\text{fc}} = E_{\text{ner}} - E_{\text{act}} - E_{\text{ohm}} - E_{\text{conc}} \quad (2)$$

式中: E_{ner} 为能斯特电压,即热力学理论电动势; E_{act} 为活化过电势; E_{ohm} 为欧姆过电势; E_{conc} 为浓差过电势。

1.2.1.2 热力学理论电动势 E_{ner}

根据Nernst的氢/氧燃料电池方程, E_{ner} 表达式为^[11]:

$$E_{\text{ner}} = \frac{\Delta G}{2F} + \frac{\Delta S}{2F} (T - T_0) + \frac{RT}{2F} [\ln(P_{\text{H}_2}) + \frac{1}{2} \ln(P_{\text{O}_2})] \quad (3)$$

式中: ΔG 为吉布斯自由能,其值为237 180 J/mol; F 为法拉第常数,其值为96 485 C/mol; ΔS 为标准摩尔熵,一般为-163.15 mol·K; R 为通用气体常数,为8.314 5 J/(mol·K); T_0 为参考温度,取值为298.15 K; T 为反应过程热力学温度; P_{H_2} 和 P_{O_2} 分别为氢气和氧气分压。

将式(3)中的常量带入计算,大多研究者把能斯特电动势表达式简化为^[12]:

$$E_{\text{ner}} = 1.229 + 8.5 \times 10^{-4} (T - 298.15) + 4.308 5 \times 10^{-5} T [\ln(P_{\text{H}_2}) + \frac{1}{2} \ln(P_{\text{O}_2})] \quad (4)$$

1.2.1.3 活化过电势

活化过电势包括阴极的活化极化电动势和阳极的活化极化电动势两个部分,将活化极化电动势由Butler-Volmer表示为^[11]:

$$E_{\text{act}} = E_{\text{act,an}} + E_{\text{act,ca}} = \frac{RT_{\text{st}}}{F\alpha} \ln\left(\frac{i}{i_0}\right) \Big|_{\text{an}} + \frac{RT_{\text{st}}}{F\alpha} \ln\left(\frac{i}{i_0}\right) \Big|_{\text{ca}} \quad (5)$$

式中: $E_{\text{act,an}}$ 、 $E_{\text{act,ca}}$ 分别为阳极和阴极活化极化过电势;

α 为电荷传输系数,通常取0.5; i_0 为交换电流密度。

通过试验数据拟合得到模型系数,将活化过电势表示为^[13-14]:

$$E_{\text{act}} = \xi_1 + \xi_2 T + \xi_3 T \ln(c_{\text{O}_2}) + \xi_4 T \ln I \quad (6)$$

式中: ξ_i 为试验数据拟合得到的模型系数; c_{O_2} 为阴极催化剂界面溶解氧气浓度,由电池温度和氧气分压决定,可由亨利定律表示为式(7)。

$$c_{\text{O}_2} = \frac{P_{\text{O}_2}}{5.08 \times 10^6 \ln\left(\frac{-498}{T}\right)} \quad (7)$$

活化极化过电势的计算表达式还可近似为:

$$E_{\text{act}} = E_0 + E_a \left(1 - e^{-c_1 \cdot \frac{l}{A}}\right) \quad (8)$$

式中: A 为质子交换膜有效活化面积; c_1 是常数,可由试验数据拟合得到; E_0 为零电流下的电压损失; E_0 和 E_a 的值由电堆温度和氧气分压决定,可分别由式(9)、式(10)计算得到。

$$E_0 = 0.279 + 8.5 \times 10^{-4} (T - 298.15) + 4.3085 \times 10^{-5} T \left[\ln\left(\frac{P_{\text{ca}} - P_{\text{sat}}}{1.01325}\right) + \frac{1}{2} \ln\left(\frac{0.1173(P_{\text{ca}} - P_{\text{sat}})}{1.01325}\right) \right] \quad (9)$$

$$E_a = (-1.618 \times 10^{-5} T - 1.618 \times 10^{-2}) \left(\frac{P_{\text{O}_2}}{0.1173} + P_{\text{sat}}\right)^2 + (1.8 \times 10^{-4} T - 0.166) \left(\frac{P_{\text{O}_2}}{0.1173} + P_{\text{sat}}\right) - 5.8 \times 10^{-4} T + 0.5736 \quad (10)$$

1.2.1.4 欧姆过电势

由欧姆定律可将欧姆过电势表示:

$$E_{\text{ohm}} = I \cdot R_{\text{ohmic}} = I \cdot (R_C + R_M) = I \cdot \left(R_C + \frac{\rho_M \cdot l}{A}\right) \quad (11)$$

式中: R_{ohmic} 为燃料电池单体的内阻,由等效阻抗 R_M 和质子电子转移过程的阻抗 R_C 组成; l 为质子交换膜厚度; ρ_M 为质子交换膜电阻率,由质子交换膜水含量和温度决定,由式(12)计算得到。

$$\rho_M = \frac{181.6 [1 + 0.03(I/A + 0.062(T/303)^2(I/S)^{2.5})]}{[\lambda - 0.634 - 3(I/A)] \exp\left[4.18\left(\frac{T - 303}{T}\right)\right]} \quad (12)$$

式中: λ 是质子交换膜的含水量。

通过试验数据拟合,将 R_{ohmic} 表示为:

$$R_{\text{ohmic}} = \frac{l}{(0.005139\lambda_m - 0.00326)A \ln\left[b\left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T}\right)\right]} \quad (13)$$

式中: b 为常数,由试验数据拟合得到; λ_m 为质子交换膜平均水含量,由式(14)计算得到。

$$\lambda_m = \begin{cases} 0.043 + 17.81a_m - 39.85a_m^2 + 36.0a_m^3, & 0 < a_m \leq 1 \\ 14 + 1.4(a_m - 1), & 1 < a_m \leq 3 \end{cases} \quad (14)$$

式中: a_m 为质子膜平均水活度。

将燃料电池单体的内阻 R_{ohmic} 由经验公式简化表示为^[14-15]:

$$R_{\text{ohmic}} = 0.01605 - 3.5 \times 10^{-5} T + 8 \times 10^{-5} I \quad (15)$$

1.2.1.5 浓差过电势

浓差极化电动势的大小和燃料电池结构及工作状态有关,可表示:

$$E_{\text{conc}} = -\frac{RT}{F} \ln\left(1 - \frac{i}{i_{\text{max}}}\right) \quad (16)$$

式中: i_{max} 为极限电流密度,一般可达2.2 A/cm²。

周苏等^[47]则将浓差极化电压近似表达为:

$$E_{\text{conc}} = m e^{\frac{n}{A}} \quad (17)$$

式中: n 为常数,由试验数据拟合得到; m 与电池温度有关,可由式(18)计算得到。

$$m = \begin{cases} 1.1 \times 10^{-4} - 1.2 \times 10^{-6} (T - 273.15), & (T \geq 312.15) \\ 3.3 \times 10^{-3} - 8.2 \times 10^{-5} (T - 273.15), & (T < 312.15) \end{cases} \quad (18)$$

1.2.2 跨膜运输模型

燃料电池跨膜运输过程中,既有气体在膜内传递,又有液体在膜内传递。跨膜运输模型的输入主要有氢气分压、氧气分压、电堆温度、阴极和阳极相对湿度、阴极和阳极压力、阴极氮气分压和电流;输出有水传递流量、氢气跨膜运输物质的量和氮气跨膜运输物质的量。

1.2.2.1 水跨膜运输

质子交换膜内水传输机制主要有热渗透(Thermal-Osmotic Drag, TOD)、电渗透(Electro-Osmotic Drag, EOD)、反扩散(Back Diffusion, BD)和水力渗透(Hydraulic Permeation, HP)^[16]。在PEMFC水传输起主要作用的主要包括两个传递现象,一个是“电渗透”(EOD),即阳极氢气产生的氢离子拖拽水分子经过质子膜到达阴极;另一个是“反扩散”(BD),即阴极和阳极之间的湿度差导致水分子从阴极扩散到阳极^[17]。

假设质子交换膜上水含量和水传递过程都是均匀分布的,设阳极到阴极为正方向,结合电渗透和反扩散,可将膜内单电池单面积的净水流量表示为式:

$$N_{\text{H}_2\text{O},\text{mem}} = N_{\text{H}_2\text{O},\text{osmotic}} - N_{\text{H}_2\text{O},\text{diff}} = n_d \frac{i}{F} - D_w \frac{c_{v,\text{ca}} - c_{v,\text{an}}}{l} \quad (19)$$

式中: n_d 为电渗透系数; D_w 是膜的水扩散系数;

$c_{v,ca}$ 和 $c_{v,an}$ 分别为阴极和阳极侧膜表面水浓度,水浓度可由式(20)计算。

$$c_{v,i} = \frac{\rho_{m,dry}}{M_{m,dry}} \lambda_i \quad (20)$$

式中: $\rho_{m,dry}$ 和 $M_{m,dry}$ 分别为膜干燥时的密度和摩尔质量, λ_i 为阴极或阳极水含量。

n_d 和 D_w 则可由膜的平均水含量 λ_m 计算得到,其计算表达式为:

$$n_d = 0.0029\lambda_m^2 + 0.05\lambda_m - 3.4 \times 10^{-19} \quad (21)$$

$$D_w = D_\lambda \ln \left[2.416 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (22)$$

其中,

$$D_\lambda = \begin{cases} 10^{-6}, & (\lambda_m < 2) \\ 10^{-6}[1 + 2(\lambda_m - 2)], & (2 \leq \lambda_m \leq 3) \\ 10^{-6}[3 - 1.67(\lambda_m - 3)], & (3 < \lambda_m < 4.5) \\ 1.25 \times 10^{-6}, & (\lambda_m \geq 4.5) \end{cases} \quad (23)$$

所以,整个电堆经过交换膜总的水质量流量等于膜内单电池单面积的净水流量 $N_{H_2O,mem}$ 与质子交换膜的有效面积 A_{mem} 、单电池片数 N_{cell} 和水的摩尔质量 M_{H_2O} 的乘积。

1.2.2.2 气体跨膜运输

气体跨膜运输是指气体分子通过膜微孔通道,利用扩散效应渗透过质子交换膜,主要包括阳极侧的氢气渗透和阴极侧的氮气渗透,其渗透量与温度有关,根据菲克定律,气体在质子交换膜中的渗透摩尔流量可表示为:

$$n_{i,mem} = k_i \times \frac{p_i \times A_{mem} \times l_m}{R \times T} \quad (24)$$

式中: k_i 为氢气或氮气的渗透系数, p_i 为氢气或氮气的分压。

1.3 燃料电池电堆建模研究归纳

质子交换膜燃料电池建模研究从组件到单体,再到电堆已经有了较多的研究。组件层级的建模研究主要是为了验证新材料和新结构设计的有效性和相对物理过程的机理性描述^[18]。电堆层级的建模研究主要是围绕电堆输出特性分析、输出性能优化、电堆控制策略设计等方面开展。

1.3.1 电堆输出特性分析与性能优化

现阶段对质子交换膜燃料电池大多采用极化曲线对其外特性进行分析。针对围绕燃料电池电堆输出特性影响因素的大量研究进行梳理,可得到影响电堆输出特性的主要影响因素有:工作压力、温度、压力差、膜含水量、氧气过量比、外部磁场等。

工作温度和工作压力对电堆的输出性能有直接

影响,大量研究表明在一定温度和压力范围内,提高工作温度和工作压力,有助于提升电堆输出性能^[11,19]。其主要原因是工作温度的升高,质子交换膜的传导率将得到提高,使之反应速度加快;而气体压力的提高能有效增加能斯特电压,同时减小活化过电势。工作温度与工作压力对电堆输出性能的影响还与工作电流密度有关,在中低电流密度区一般采用提高温度来降低电压损失,在高电流密度区采取提高工作压力来减小浓度电压损失,进而提高燃料电池输出性能^[20]。

膜的电导率还与膜水含量有关,膜水含量的增加,有利于提高膜电导率,加快质子传递速率,同时减小电池膜电阻。因此随着膜水含量的增加,电堆输出特性将有所改善^[21]。但过高含水量也将可能导致水淹故障^[22]。同样有研究表明,在中大电流密度范围内,膜水含量引起的膜变形对PEMFC性能影响显著^[23]。

除了工作温度、压力、膜水含量等影响因素,还有如氧气过量比、转移系数、电流密度、电池内阻等对燃料电池稳态性能都有较大影响^[24]。氧气过量比适当增大可提高电堆输出性能,但氧气过量比过大则会降低系统净功率^[19]。

已有燃料电池建模的维度有一维、二维、三维。多维度、多组分的电堆模型动态特性研究是后续研究的重点。如构建多时间尺度模型,进行PEMFC动态性能多尺度分析^[25]。又如建立一个三维、多组分和多物理变量的PEMFC模型,研究了外部磁场对PEMFC性能退化的影响^[26]。

随着科学技术的发展,材料、控制技术等的不断提高,原影响因素的局限性也将逐步被打破,因此如针对高温质子交换膜、大功率电堆等,以及多影响因素之间的耦合作用的研究也将是后续研究重点之一。高温质子交换膜燃料电池(HT-PEMFC)具有提高催化反应效率、防止催化剂中毒、优化水管理和热管理系统等优势^[27]。研究表明操作温度、掺杂水平和膜厚度对HT-PEMFC的性能有显著影响^[28]。

1.3.2 电堆控制策略优化设计

燃料电池仿真模型建立除了分析各影响因素对电堆输出特性的影响,提出优化解决方案外,还有部分学者在提高PEMFC输出电压稳定控制技术上开展研究。模糊PID控制器^[29]、补偿控制器^[30]、瞬态搜索优化(Transient Search Optimization, TSO)策略^[31]、模型预测控制法(Model Predictive Control Method, MPC)^[32]等都被用于PEMFC输出特性控制,能更好地对电堆性能影响的各因素进行调节控制。如构建基于一维两

相非等温物理稳态 PEMFC 模型,可用于捕捉气体和液体传输的交互特性,能预测干旱、半湿润和湿润区域的总输运阻力^[33]。

由于 PEMFC 发电过程涉及多学科、多变量且变量之间相互耦合以及自身的非线性和时变性,利用经验模型和半经验模型是基于大量假设为前提,且难免会出现大量微分复杂代数方程,因此利用数据驱动模型的方法,采用神经网络结构辨识构建 PEMFC 模型将是后续研究的热点。BP 神经网络结构辨识^[34]、贝叶斯正则化 BP 神经网络^[35]、人工神经网络(Artificial Neuron Network, ANN)模型^[36]等越来越多的计算机网络控制技术将被应用到 PEMFC 输出特性控制研究中。

2 燃料电池系统模型

燃料电池的控制策略还必须考虑重要执行器和外围系统的动态特性,在质子交换膜燃料电池系统中,电堆反应物的质量流量、压力、温度等运行条件,实际上是由相关辅助子系统决定的,因此有必要研究电池系统级建模问题。燃料电池系统辅助子系统主要包括空气系统、氢气系统、热管理系统等。燃料电池系统级建模在系统设计开发和控制策略优化、测试中起到决定性作用。

2.1 PEMFC 辅助子系统模型

2.1.1 空气系统模型

PEMFC 空气系统主要是给电堆提供适合空气,使其参与膜内的电化学反应。其组成主要包括空压机、中冷器、加湿器、节气门、膨胀机、空气过滤器等。PEMFC 空气供应系统是多变量控制系统,主要的被控变量是空气入堆流量和压力,系统的输入包括需求电流、空气流量及空气压力,输出包括空压机转速和节气门开度。

2.1.1.1 空压机模型

空压机模型是用来计算空气经过空压机后的流量、压力、温度、湿度等物理量的变化情况,由于空气路中的空气流量和压力存在耦合关系,一般由空压力模型和节气门模型共同建立起空气路的流量与压力整体分布。

2.1.1.2 管路模型

管路模型是计算空气在供应管路中的物理状态变化情况。

因空压机出口到中冷器入口的管路较长且弯曲,空气流经该段管路时压力变化相对其他段管路较明显,故仅考虑该段管路进行建模,一般通过试验获得

质量流量和压力降的关系数据,然后通过拟合得到管路压降和质量流量的关系。

2.1.1.3 加湿器模型

加湿器模型是用于计算加湿水质量流量和加湿后空气的相对湿度。一般采用出堆空气反应水透过膜加湿器实现对入堆空气加湿。即未加湿的空气经管层进入电堆阴极,流出阴极的气体流入壳层,由于气体中含有大量反应生成的水蒸气,从而造成加湿器内膜两侧水存在浓度差,使得壳层中气体的水穿过膜到达管层,从而达到加湿入堆空气的作用。

穿过加湿膜进入管层的加湿水质量流量计算表达式为:

$$W_{H_2O, hm} = D_{hw} \frac{\Delta c_v}{l_{hm}} \times M_{H_2O} \times A_{hm} \times N_{hm} \quad (25)$$

式中: l_{hm} 、 A_{hm} 和 N_{hm} 分别为加湿膜厚度、有效面积和片数, D_{hw} 为加湿膜水扩散系数, Δc_v 为管层和壳层侧膜表面的水浓度差。

2.1.1.4 电堆阴极流道模型

阴极流道模型用于模拟空气在电堆阴极流道内流动传递的动态行为,建模主要应用理想气体定律、质量流动连续性原理和混合气体性质等基本原理解。质量流动连续性原理主要用于空气组分的质量流量计算。由理想气体状态方程,可得阴极容腔内最大水蒸气质量、氧气分压、氮气分压和水蒸气分压。

根据气体流动连续性规律,将阴极部分氧气质量和水蒸气质量微分方程表示为^[37]:

$$\begin{aligned} \frac{dm_{O_2, ca}}{dt} &= F_{O_2, ca, in} - F_{O_2, ca, out} - F_{O_2, reacted}; \\ \frac{dm_{H_2O, ca}}{dt} &= F_{H_2O, ca, in} - F_{H_2O, ca, out} - F_{L, ca, out} + F_{H_2O, member} + F_{H_2O, ca, gen} \end{aligned} \quad (26)$$

式中: $F_{O_2, ca, in}$ 和 $F_{O_2, ca, out}$ 分别为阴极氧气的输入和输出流量, $F_{O_2, reacted}$ 为消耗的氧气流量, $F_{H_2O, ca, in}$ 和 $F_{H_2O, ca, out}$ 分别为阴极输入和输出水蒸气流量, $F_{L, ca, out}$ 为离开阴极水流量, $F_{H_2O, member}$ 为水分子经过交换膜流量, $F_{H_2O, ca, gen}$ 为反应产生水蒸气流量。

2.1.2 氢气系统模型

氢气系统主要包括供氢、排氢排水和氢气循环三个部分。主要目的是保证阴阳极压差维持在一定范围内,阳极入口实际压力能满足需求压力,且具有一定的氢气过量系数。氢气系统动态模型主要包括减压阀模型、氢气喷嘴与引射模型、氢气循环泵模型、气

水分离器模型、排水阀模型、排氢阀模型和阳极流道模型。

2.1.2.1 引射器模型

引射器可以对氢气进行降压增速,形成压差将引射气体吸入,经过混合段混合后再将气体由扩压段减速增压流出。

引射器入口处氢气质量流量 q_m 和喷嘴处马赫数 M_a 分别为:

$$q_m = \begin{cases} \frac{C_D A P_p}{\sqrt{R_{H_2} T}} \left(\frac{P_p}{P_s}\right)^{\frac{1}{\gamma}} \left\{ \frac{2\gamma}{\gamma-1} \left[1 - \left(\frac{P_s}{P_p}\right)^{\frac{1}{\gamma}} \right] \right\}^{\frac{1}{2}}, & \frac{P_{out}}{P_{in}} \geq 0.528 \\ \frac{C_D A P_p}{\sqrt{R_{H_2} T}} \gamma^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2}{\gamma+1}\right)^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma-1)}}, & \frac{P_{out}}{P_{in}} < 0.528 \end{cases} \quad (27)$$

$$M_a = \sqrt{\frac{2[1 - (P_s/P_p)^{(\gamma-1)/\gamma}]}{\gamma - 1}} \quad (28)$$

式中: R_{H_2} 为氢气气体常数, T 为氢气喷嘴温度, A 为喷嘴开口面积, P_p 和 P_s 分别为工作气体压力和引射气体压力, γ 为氢气比热比。

2.1.2.2 氢气循环泵模型

氢气循环泵循环摩尔流量为:

$$\dot{n} = \frac{u_{bl} \cdot w_{bl,max}}{M_{rec}} \quad (29)$$

式中: \dot{n} 为氢气循环泵循环摩尔流量, u_{bl} 为氢气循环泵的开启信号, $w_{bl,max}$ 为标准条件下氢气循环泵的角速度, M_{rec} 为反应物的摩尔质量。

2.1.2.3 阳极流道模型

阳极入口气体流量 $\dot{n}_{ai}(t)$ 等于氢罐供给的氢气流量 $\dot{n}_{hi}(t)$ 和氢气循环泵输送的含氢混合流量 $\dot{n}_{bi}(t)$ 之和。

$$\dot{n}_{ai}(t) = \dot{n}_{hi}(t) + \dot{n}_{bi}(t) \quad (30)$$

阳极出口气体流量为阳极入口气体流量 $\dot{n}_{an,in}$ 加上跨膜运输的氮气流量 \dot{n}_{cr,N_2} 和水跨膜运输量 \dot{n}_{cr,H_2O} ,减去反应的气体流量 \dot{n}_{react,H_2} ,再减去跨膜运输的氢气流量 \dot{n}_{cr,H_2} 。

$$\dot{n}_{an,out} = \dot{n}_{an,in} - \dot{n}_{cr,H_2} - \dot{n}_{react,H_2} + \dot{n}_{cr,N_2} + \dot{n}_{cr,H_2O} \quad (31)$$

2.1.3 热管理系统模型

PEMFC热管理系统主要由混合器、节温器、散热器、冷却液储存罐、冷却液循环泵和冷却液旁通阀组成。热管理系统模型输入为环境温度、电堆需求电流和温度;输出是冷却液旁通阀开度、冷却液循环泵转速、散热器风扇转速和节温器开度。

2.1.3.1 混合器模型

混合器中冷却液温度取决于流经电堆和中冷器

的冷却液流量和温度,可用以下模型来描述:

$$T_{co,mix} = \frac{w_{co,st} \times T_{co,st} + w_{co,ic} \times T_{co,ic}}{w_{co,mix}} \quad (32)$$

式中: $T_{co,mix}$ 、 $T_{co,st}$ 和 $T_{co,ic}$ 分别为混合器出口冷却液温度、电堆出口冷却液温度和中冷器出口冷却液温度, $w_{co,mix}$ 、 $w_{co,st}$ 和 $w_{co,ic}$ 分别为流经混合器、电堆和中冷器的冷却液流量。

2.1.3.2 散热器模型

散热器是实现冷却液与环境的热交换,散热器的散热量由流经散热器的冷却液流量和风速共同决定,一般通过试验测定。得到散热量后,可根据传热学方程计算冷却液温度如下:

$$\dot{T}_{co,rad} = \frac{w_{co,rad} \times c_{co} \times (T_{co} - T_{co,rad}) - Q_{rad}}{m_{co,rad} \times c_{co}} \quad (33)$$

式中: $\dot{T}_{co,rad}$ 为散热器出口冷却液温度变化率, $w_{co,rad}$ 和 $m_{co,rad}$ 分别为散热器中冷却液的流量和质量, T_{co} 和 $T_{co,rad}$ 分别为循环冷却液温度和散热器出口冷却液温度, c_{co} 为冷却液比热容, Q_{rad} 为散热器散热量。

2.1.3.3 冷却循环泵模型

冷却循环泵是为冷却液循环流动提供动力,控制冷却液的流量。冷却循环泵流量 $W_{co,pum}$ 和转速 n_{pum} 之间为线性关系。

$$W_{co,pum} = k \times n_{pum} \quad (34)$$

式中: k 为冷却循环泵转速与流量的转换系数,一般由试验测得或生产厂家提供。

2.2 PEMFC系统模型研究归纳

PEMFC具有启动速度快、零污染、高效、高可靠性等优点,正逐步应用于新能源汽车等领域。越来越多的研究者基于PEMFC电堆,增加空压机、氢循环泵、冷却水泵、加湿器等辅助设备构造电源系统,并进行深入研究^[38]。

2.2.1 空气供给系统和氢气供给系统

空气供给系统和氢气供给系统是燃料电池系统主要组成系统,其建模的可靠性直接影响电池系统仿真结果的可靠性。有的在二维瞬态多相电堆模型基础上,增加了加湿器模型、空压机模型和冷却模型,得到PEMFC系统模型^[39]。通过增加包含流量控制阀、供应歧管、返回歧管和氢气循环泵等,得到氢气供给系统模型^[40]。为了满足燃料电池空气供气要求,可以采用反馈控制与双回路PI控制相结合的策略,调节燃料电池空气系统进气的流量和压力^[41]。为了提高氢气利用率和减小阳极气体压力波动对PEMFC使用寿命的潜在危害,采用双喷射氢气供循环系统是一种有效

的途径^[42]。

为了简化空气供给与氢气供给系统模型,一般根据流体力学等知识对仿真模型进行一定条件的假设,如理想气体、绝热系统、气体均匀分布等。因此如新型二阶主动抗扰控制(2-ADRC)算法^[43]、空气匮乏环境的闭式电池模型^[44]、PEMFC空气供应系统非线性鲁棒控制法^[45]等计算机网络非线性控制策略与建模方法研究是未来研究重点。

2.2.2 PEMFC能量管理控制

能量管理控制直接影响电池系统的输出效率,因此备受众多研究者的关注。能量管理控制研究,可以结合湿度、压力、电流密度、工作温度等对电池系统的输出影响进行研究^[46]。针对单堆燃料电池系统的输出功率、效率和寿命问题,有研究提出了多级能量管理策略,有效地提高了燃料电池的经济性和系统寿命性能^[47]。随着大功率燃料电池研究的深入,多堆燃料电池研究也备受欢迎,针对多堆燃料电池系统中各电堆温度分析控制,一种将阴阳极出口气体温度作为电堆温度修正项的并联式热管理子系统模型被提出^[48]。能量管理控制与电池系统的废热应用有直接关系,为了通过废热回收提高PEMFC能源利用率,集成能源系统是一种不错的选择^[49]。

2.2.3 PEMFC与辅助子系统的耦合协同建模

电堆系统与辅助系统的耦合协同直接关系到电池系统仿真的可靠性。质子交换膜燃料电池与空气源热泵(PEMFC-ASHP)耦合模型^[50]、空气流量和阴极压力的协调控制^[51]、液体水传输、蒸气凝结、共轭传热、导电及其相互作用^[52]等PEMFC系统工作过程中的更细致的建模与认识,有助于提高电池系统的仿真可靠性。

PEMFC系统建模虽然可以研究各部件和各工况对PEMFC性能的影响,但目前大多系统级建模很少采用机理模型,因此不能精确反应系统参数对燃料电池内部现象的影响。

3 结论与展望

本文对PEMFC电堆及系统层级建模研究现状进行了归纳,梳理了电堆层级和系统层级模型的主要研究内容。当前关于PEMFC电堆及系统层级建模虽然已有很多成果,但还存在着较多局限性。

3.1 PEMFC建模局限性

3.1.1 PEMFC模型对试验数据依赖性大

燃料电池电堆及系统模型建模过程中的部分参数

是根据试验所得数据进行拟合得到,影响模型可靠性。

数据驱动模型是根据大量数据集构建的,没有预设模型,且具有自主学习和自适应学习能力,能有效解决机理分析模型的参数可靠性问题,但数据驱动模型存在研究成本高的问题。数字孪生模型能较好兼顾机理分析和数据驱动建模的优点,是PEMFC建模研究的新方向。

3.1.2 PEMFC系统模型建模基于较多假设为前提

在建立水跨膜运输模型中,一般假设质子交换膜上含水量和水传递过程都是均匀分布的。针对热力学建模,通常假设不考虑热接触内阻、双极板不与环境进行热交换等。在氢气系统动态模型中,通常假设阳极流道气体均匀分布,遵循理想气体定律;氢气为纯氢,且沿管道没有压降等。建模过程中的这些假设都会影响模型的精确性。

一方面应加强机理分析模型对诸多假设条件的建模研究;另一方面数据驱动模型和数字孪生模型等建模方法能有效提高PEMFC仿真模型精度。

3.2 PEMFC建模发展趋势

(1)构建高维多域多尺度耦合动态机理模型。当前大多电堆模型是基于低维、稳态或简化的机理模型,不利于完整分析燃料电池机理特性。构建含括“水、热、电、气、力”多域多尺度模型,充分揭示燃料电池内部多物理量多参数耦合关系的动态机理模型是燃料电池电堆模型的发展趋势。

(2)拓展PEMFC应用范围建模研究。PEMFC系统建模已有较多研究成果,推进PEMFC工程应用还需要拓展其应用范围。如以氨分解气体为燃料的PEMFC系统^[53],虽然结果表明以氨分解气体为燃料的PEMFC最大输出功率比纯氢的PEMFC效率低10%,但为拓展PEMFC应用范围的研究提出了新思路。

(3)加强PEMFC状态估计模型构建研究。状态估计模型构建有助于提高模型控制精度。如一种用于动态工作条件下的PEMFC参数估计模型^[54],对几种负载变化,能准确实时表征PEMFC的动态响应,为进一步深化PEMFC系统建模提供新思路。

(4)深化高温质子交换膜燃料电池系统建模研究。高温质子交换膜燃料电池具有诸多优点,目前已有大量围绕高温质子交换膜燃料电池组件及单体层级开展研究,深化高温质子交换膜燃料电池系统建模研究是未来发展趋势之一。

(5)开展多堆燃料电池系统建模研究。当前关于PEMFC建模研究鲜有涉及多堆燃料电池系统建模研

究,随着研究的不断深入,应用范围的不断扩大,通过串并联多堆燃料电池得到不同功率等级的燃料电池系统,以满足大功率等不同情境应用将是燃料电池系统建模研究的重要发展趋势。

参 考 文 献

- [1] CHEN H, PEI P, SONG M. Lifetime Prediction and the Economic Lifetime of Proton Exchange Membrane Fuel Cells[J]. *Applied Energy*, 2015, 142: 154–163.
- [2] 马睿, 任子俊, 谢任友, 等. 基于模型特征分析的质子交换膜燃料电池建模研究综述[J]. *中国电机工程学报*, 2021, 41(22): 7712–7730.
- [3] 王振, 韩吉田, 王济浩, 等. 基于 MATLAB 的质子交换膜燃料电池仿真实验系统[J]. *山东大学学报(工学版)*, 2007(0): 38–42+51.
- [4] 宋显珠, 郑明月, 肖劲松, 等. 氢燃料电池关键材料发展现状及研究进展[J]. *材料导报*, 2020, 34(S2): 1001–1005+1016.
- [5] NANADEGANI F S, LAY E N, IRANZO A, et al. On Neural Network Modeling to Maximize the Power Output of PEMFCs[J]. *Electrochimica Acta*, 2020, 348: 136345.
- [6] NANADEGANI F S, LAY E N, SUNDEN B. Computational Analysis of the Impact of a Micro Porous Layer (MPL) on the Characteristics of a High Temperature PEMFC[J]. *Electrochimica Acta*, 2020, 333: 135552.
- [7] 李龙, 梁前超, 赵建锋, 等. 空冷型 PEMFC 的动态建模仿真及验证[J]. *电源技术*, 2020, 44(2): 200–203+259.
- [8] KRAVOS A, RITZBERGER D, TAVCAR G, et al. Thermodynamically Consistent Reduced Dimensionality Electrochemical Model for Proton Exchange Membrane Fuel Cell Performance Modelling and Control[J]. *Journal of Power Sources*, 2020, 454: 227930.
- [9] YANG Y, ZHU W C, LI Y, et al. Modeling of PEMFC and Analysis of Multiple Influencing Factors on Output Characteristics[J]. *Journal of The Electrochemical Society*, 2022, 169(3): 034507.
- [10] 潘瑞, 杨朵, 陈宗海. 质子交换膜燃料电池建模方法研究综述[C]//第 18 届中国系统仿真技术及其应用学术年会论文集(18th CCSSTA 2017), 2017: 110–114.
- [11] 张可健, 曲大为, 兰洪星, 等. 基于 MATLAB/Simulink 的氢燃料电池系统建模与仿真[J]. *科学技术与工程*, 2021, 21(13): 5380–5386.
- [12] AMPHLETT J C, BAUMERT R M, MANN R F, et al. Parametric Modelling of the Performance of a 5-kW Proton-Exchange Membrane Fuel Cell Stack[J]. *Journal of Power Sources*, 1994, 49(1–3): 349–356.
- [13] 戚志东, 彭富明, 刘猛, 等. 基于模糊 PID 的质子交换膜燃料电池输出电压控制[J]. *南京理工大学学报*, 2012, 36(3): 432–436.
- [14] 董超, 李鸿鹏, 胡艳珍. 质子交换膜燃料电池输出电压性能优化的研究[J]. *计算机仿真*, 2017, 34(9): 94–98.
- [15] 马洋洋, 宋宛泽, 王鹏宇. 质子交换膜燃料电池建模研究综述[J]. *电源技术*, 2021, 45(12): 1660–1664.
- [16] IJAODOLA O S, EL-HASSAN Z, OGUNGBEMI E, et al. Energy Efficiency Improvements by Investigating the Water Flooding Management on Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC)[J]. *Energy*, 2019, 179: 246–267.
- [17] 夏增刚. 质子交换膜燃料电池电堆水传输机理综述[J]. *时代汽车*, 2022(5): 174–175.
- [18] 李政翰, 涂正凯. 质子交换膜燃料电池仿真模型研究进展[J]. *化工进展* 2022, 41(10): 5272–5296.
- [19] 顾洮, 袁野. 质子交换膜燃料电池仿真建模与分析[J]. *电源技术*, 2021, 45(4): 459–462.
- [20] 李鹏程, 高松, 孙宾宾. 质子交换膜燃料电池电压仿真与分析[J]. *山东理工大学学报(自然科学版)*, 2021, 35(1): 56–62.
- [21] 周嫣. 质子交换膜燃料电池建模与动态响应仿真分析[J]. *电子技术与软件工程*, 2022(14): 113–117.
- [22] JABBARY A, ROSTAMI A S, SAMANIPOUR H, et al. Numerical Investigation of 3D Rhombus Designed PEMFC on the Cell Performance[J]. *International Journal of Green Energy*, 2021, 18(5): 425–442.
- [23] DONG Z, LIU Y, QIN Y. Coupled FEM and CFD Modeling of Structure Deformation and Performance of PEMFC Considering the Effects of Membrane Water Content[J]. *Energies*, 2022, 15(15): 5319.
- [24] 李文涛, 孙宾宾, 鲁花蕾, 等. 质子交换膜燃料电池建模与仿真分析[J]. *山东理工大学学报(自然科学版)*, 2022, 36(6): 13–19.
- [25] 王季康, 李华, 彭宇飞, 等. PEMFC 多时间尺度下的动态特性研究[J/OL]. *物理学报*, 2022, 71(15): 158802.
- [26] SUN Y, MAO L, WANG H, et al. Simulation Study on Magnetic Field Distribution of PEMFC[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2022, 47: 33439–33452.
- [27] 李金晟, 葛君杰, 刘长鹏, 等. 燃料电池高温质子交换膜研究进展[J]. *化工进展*, 2021, 40(9): 4894–4903.
- [28] LI D, MA Z, SHAO W, et al. Finite Time Thermodynamic Modeling and Performance Analysis of High-Temperature Proton Exchange Membrane Fuel Cells[J]. *International Journal of Molecular Sciences*, 2022, 23(16): 9157.
- [29] 张庚, 刘国金. 质子交换膜燃料电池输出电压稳定控制技术[J]. *电源学报*, 2022, 20(1): 134–140.

- [30] 王季康, 李华, 彭宇飞, 等. PEMFC 建模及性能分析控制[J]. 电子测量技术, 2022, 45(8): 27-34.
- [31] ABBOU A, EL HASSNAOUI A. A Novel Approach for Predicting PEMFC in Varying Ambient Conditions by Using a Transient Search Optimization Algorithm Based on a Semi-Empirical Model[J]. AIMS Energy, 2022, 10(2): 254-272.
- [32] CHEN X, FANG Y, LIU Q, et al. Temperature and Voltage Dynamic Control of PEMFC Stack Using MPC Method[J]. Energy Reports, 2022, 8: 798-808.
- [33] RAHMAN M, SARKER M, MOJICA F, et al. A Physics-Based 1-D PEMFC Model for Simulating Two-Phase Water Transport in the Electrode and Gas Diffusion Media[J]. Applied Energy, 2022, 316(6): 119101.
- [34] 柯超, 甘屹, 王俊, 等. 基于BP神经网络辨识模型的PEMFC系统建模[J]. 软件工程, 2020, 23(3): 14-16+8.
- [35] 夏世远, 苏建徽, 杜燕, 等. 基于贝叶斯正则化BP神经网络的PEMFC电堆建模[J]. 合肥工业大学学报(自然科学版), 2021, 44(7): 895-899.
- [36] 石磊, 许思传, 刘泽. 基于人工神经网络的3 kW质子交换膜燃料电池电堆一致性优化[J]. 太阳能学报, 2022, 43(8): 498-503.
- [37] 房鑫, 张洪伟, 隋宗强, 等. 车用质子交换膜燃料电池系统建模[J]. 青岛大学学报(工程技术版), 2018, 33(1): 6-10.
- [38] CHEN X, LONG S, HE L, et al. Performance Evaluation on Thermodynamics-Economy-Environment of PEMFC Vehicle Power System under Dynamic Condition[J]. Energy Conversion and Management, 2022, 269: 116082.
- [39] YANG Z, DU Q, JIA Z, et al. Effects of Operating Conditions on Water and Heat Management by a Transient Multi-Dimensional PEMFC System Model[J]. Energy, 2019, 183: 462-476.
- [40] HE H, QUAN S, WANG Y. Hydrogen Circulation System Model Predictive Control for Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell-based Electric Vehicle Application[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2020, 45(39): 20382-20390.
- [41] 张白桃, 宫大鹏, 刘泽, 等. 基于120 kW燃料电池空气系统试验的流量和压力协调控制[J]. 同济大学学报(自然科学版), 2021, 49(S1): 217-223.
- [42] CHEN L, XU K, YANG Z, et al. Optimal Design and Operation of Dual-Ejector PEMFC Hydrogen Supply and Circulation System[J]. Energies, 2022, 15(15): 5427.
- [43] WANG P, MA Y, LI J, et al. A Novel Control Algorithm of the Air Supply Subsystem: Based on Dynamic Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cell[J]. Processes, 2022, 10(8): 1499.
- [44] LIU Z, LIU L, ZHOU Y. Modelling and Simulation Analysis of Closed Proton Exchange Membrane Fuel Cell System[J]. Energy Reports, 2022, 8: 162-168.
- [45] 马彦, 朱添麟. 燃料电池空气供应系统非线性鲁棒控制[J]. 车用发动机, 2021(1): 9-17.
- [46] SAADAOUI F, MAMMAR K, HAZZAB A. Water Activity Control in PEMFC Electrical Energy System[J]. Majlesi Journal of Electrical Engineering, 2021, 15(4): 1-11.
- [47] 周苏, 王克勇, 文泽军, 等. 车用多堆燃料电池系统能量管理与控制策略[J]. 同济大学学报(自然科学版), 2021, 49(1): 107-115.
- [48] 沈伟, 石霖, 陈春光, 等. 多堆燃料电池系统温度模型预测控制[J]. 同济大学学报(自然科学版), 2022, 50(9): 1368-1376.
- [49] WANG Y, ZHANG H, QI J, et al. Thermodynamic and Exergy Analysis of A Novel PEMFC-ORC-MH Combined Integrated Energy System[J]. Energy Conversion and Management, 2022, 264: 115709.
- [50] MA Z, CAI L. Study on the Coupling Properties of Hydrogen PEMFC and Air Source Heat Pump[C]//Journal of Physics: Conference Series. IOP Publishing, 2022, 2263(1): 012023.
- [51] LI M, YIN H, DING T, et al. Air Flow Rate and Pressure Control Approach for the Air Supply Subsystems in PEMFCs[J]. ISA Transactions, 2022, 128: 624-634.
- [52] JIAO D, JIAO K, ZHONG S, et al. Investigations on Heat and Mass Transfer in Gas Diffusion Layers of PEMFC with a Gas-Liquid-Solid Coupled Model[J]. Applied Energy, 2022, 316: 118996.
- [53] ZHAO J F, LIANG Q C, LIANG Y F, et al. Experimental and Simulation Study of PEMFC Based on Ammonia Decomposition Gas as Fuel[J]. Journal of Electrochemical Science and Technology, 2021, 13(1): 63-70.
- [54] DIAB Y, AUGER F, SCHAEFFER E, et al. Real-Time Estimation of PEMFC Parameters Using a Continuous-Discrete Extended Kalman Filter Derived from a Pseudo Two-Dimensional Model[J]. Energies, 2022, 15(7): 2337.

(责任编辑 明慧)