

质子交换膜燃料电池故障诊断的模式识别方法

周苏^{1,2}, 韩秋玲¹, 胡哲¹, 杨锐¹

(1. 同济大学 汽车学院, 上海 201804; 2. 同济大学 中德学院, 上海 201804)

摘要: 针对质子交换膜燃料电池(proton exchange membrane fuel cell, PEMFC)故障诊断,提出了一种基于电化学交流阻抗谱(EIS)的组合模式识别方法,即采用典型频率点的 EIS 拟合,快速获取 EIS 并达到抑制低频点“飘散”的效果,以 EIS 与实轴的两个交点(高频交点和低频交点)作为故障诊断的特征向量值,采用模糊 C 均值聚类和支持向量机算法分别对样本特征向量、待测特征向量进行聚类和分类。采用已发表文献中的实验数据构造了故障模型并进行了仿真分析,结果表明提出的方法快速、有效。

关键词: 质子交换膜燃料电池; 电化学交流阻抗谱; 故障诊断; 模式识别

中图分类号: TK91

文献标志码: A

Pattern Recognition Method for Proton Exchange Membrane Fuel Cell Fault Diagnosis

ZHOU Su^{1,2}, HAN Qiuling¹, HU Zhe¹, YANG Kai¹

(1. College of Automotive Studies, Tongji University, Shanghai 201804, China; 2. Chinesisch-Deutsches Hochschulkolleg, Tongji University, Shanghai 201804, China)

Abstract: Based on electrochemical impedance spectroscopy (EIS), a combined pattern recognition method is proposed for proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) fault diagnosis. By fitting typical frequency points, quickly drawing EIS for suppressing low-frequency points “drift”, taking two intersections with the real axis of the EIS (high frequency intersection and low frequency intersection) as fault diagnosis eigenvector values, a combined algorithm of Fuzzy C-means Algorithm and Support Vector Machine is used to cluster sample eigenvectors and classify under test eigenvectors. Simulation is developed in MATLAB by using experimental data from the published papers, results show the proposed method is fast and effective.

Key words: proton exchange membrane fuel cell (PEMFC);

electrochemical impedance spectroscopy; fault diagnosis; pattern recognition

质子交换膜燃料电池(PEMFC)以其较低的工作温度、高能量密度和零排放等优点得到了广泛的关注。然而其稳定性和寿命限制了该技术的推广,实时诊断 PEMFC 内部的状态对于提高它的稳定性尤为重要。目前已有的 PEMFC 故障诊断方法中^[1-4]较为成熟的技术有电化学交流阻抗谱方法^[5]和单片电压巡检(Cell Voltage Monitoring, CVM)方法^[6]等。但是,传统的 EIS 方法对专业知识要求较高,耗时长不适合在线诊断;CVM 方法需要大量的电压采集路线,经济性优势不明显,并且巡检周期长,不能实时诊断故障类型。模式识别方法已经广泛应用于自动化技术领域,但是较少应用于 PEMFC 故障诊断。

针对以上存在的问题,提出了一种基于快速 EIS 拟合的 PEMFC 组合模式识别故障诊断新方法。采用已发表文献的实验数据进行仿真分析,验证该方法的效果。

1 传统的 EIS 方法

在待测的 PEMFC 稳态工作点上施加一个小幅值的交流电压或电流激励信号并通过同步采集对应的电流或电压响应信号,获取的阻抗随频率变化的函数(曲线)即为 EIS。传统的 EIS 方法通过分析 EIS 对应的电化学反应过程特征,可以得到 PEMFC 内部电化机理的变化情况(如膜干或水淹),进而判定 PEMFC 发生故障的类型。

图 1 所示的 Randles 等效电路模型^[7]通常被用于描述 PEMFC 的电化学反应过程。电阻 R_m 称为膜

收稿日期: 2016-06-07

基金项目: 高等学校创新引智计划(B08019);上海市重点学科项目(B303)

第一作者: 周苏(1961—),男,教授,博士生导师,工学博士,主要研究方向为新型车辆动力系统,燃料电池系统建模、仿真及控制。

E-mail: suzhou@tongji.edu.cn

通讯作者: 胡哲(1985—),男,博士生,主要研究方向为车用燃料电池建模、仿真与控制。E-mail: solar.hu@re-fire.cn

内阻,与欧姆极化有关;电阻 R_{ct} 描述电极的极化效应;并联的电容 C_{dl} 与双电层现象有关;Warburg 阻抗 ZW 用来描述质量传输过程。

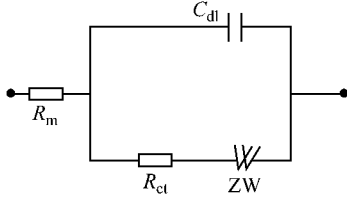


图1 Randles 模型示意图

Fig.1 Schematic diagram of Randles Model

包含 PEMFC 质量传输特征的 EIS 如图 2 所示。图中包含两个半圆,第一个半圆表示极化环,又称高频环;第一个与实轴的交点横坐标值为 R_m ,以下简称高频交点。第二半圆表示扩散环,又称低频环;第二个与实轴的交点横坐标值为 $R_m + R_{ct}$,以下简称低频交点。

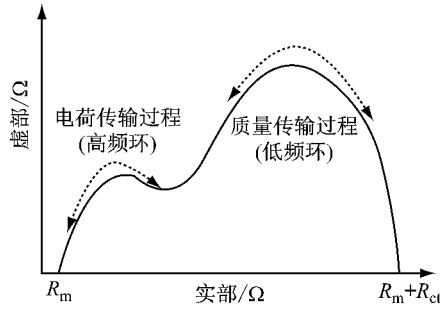


图2 包含质量传输特性的 PEMFC EIS

Fig.2 PEMFC EIS including mass transmission characteristics

2 模式识别的方法

2.1 FCM 聚类方法

模糊 C 均值聚类方法 (Fuzzy C-means Algorithm, FCM) 是一种无监督的动态模糊聚类方法^[8]。算法把 n 个向量 x_j ($j=1, 2, \dots, n$) 分为 c 个组,求每组的聚类中心 C_i ,使非相似性(或距离)指标的目标函数达到最小。当选择欧氏距离表示 i 组中的向量与聚类中心 C_i 的非相似性指标时,其目标函数定义如下:

$$J = \sum_{j=1}^n \sum_{i=1}^c w_{ij}^m \|x_j - C_i\|^2 \quad (1)$$

$$\text{其中 } w_{ij}^m = \frac{1}{\sum_{k=1}^c \left(\frac{\|x_j - C_i\|}{\|x_j - C_k\|} \right)^{\frac{2}{m-1}}} \quad (2)$$

称为归一化的隶属度。

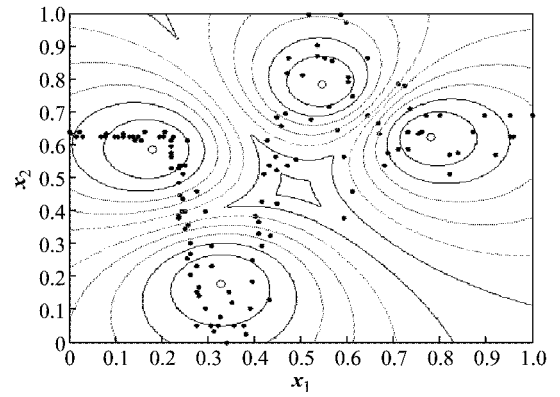


图3 FCM 聚类效果

Fig.3 Results of FCM clustering

当 $x=[x_1, x_2]$ 表示二维特征向量时,FCM 聚类效果如图 3 所示。图中每条包围聚类中的闭合曲线代表不同的隶属度等值线,从内到外曲线对应的隶属度值不断下降。

2.2 SVM 算法

在机器学习中,支持向量机^[9] (Support Vector Machine, SVM) 是一种有监督的学习方法。对于线性问题 SVM 可以较快构造分类界面进行线性分类,而涉及非线性分类问题时,则需采用核函数将数据映射到高维空间后再进行分类,本文采用径向基核函数。

SVM 的线性分类方法与感知器相同,假设数据中含有两种类别,分别标记为 1 和 -1。超平面分类函数可以写为

$$f(x) = w \cdot x + b \quad (3)$$

线性分类器的边界由参数向量 w 和 b 决定,最大的边界处所在的数据点 $x=[x_1, x_2]$ 被称为该线性分类器的支持向量,如图 4 所示。

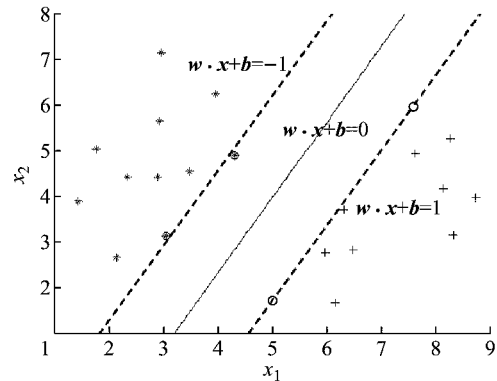


图4 线性 SVM 分类效果

Fig.4 Result of Linear SVM classification

采用 SVM 进行 PEMFC 故障分类时,故障类型设为正常、膜干和水淹三类,因此,需要采用多分类

策略,使二分类 SVM 算法适用于多分类的情况. 常用的分类策略有最小输出策略、误差校正输出策略、一对多策略和一对一策略^[10]. 本文选择采用一对一的分类策略.

3 仿真模型的搭建和故障类型的构造

3.1 PEMFC 仿真模型的建立

为了验证模式识别方法的有效性,在 Matlab/Simulink 中搭建了 PEMFC 模型. 同时,为了模拟干扰信号,在 EIS 测量过程中人为加入输入干扰信号、输出干扰信号和测量干扰信号,并假设干扰信号符合高斯正态分布. PEMFC 的 EIS 测量流程如图 5 所示,其中 U_t , I_t 分别表示 t 时刻燃料电池的采集电压值和采集电流值.

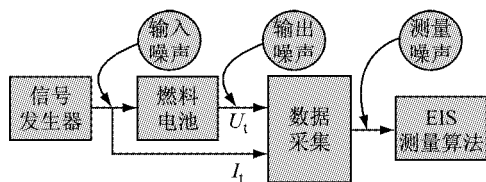


图 5 PEMFC 的 EIS 测量流程图

Fig. 5 Flow chart of PEMFC EIS measurement

在 Simulink 环境下搭建的 PEMFC 的 EIS 测量仿真模型如图 6 所示.

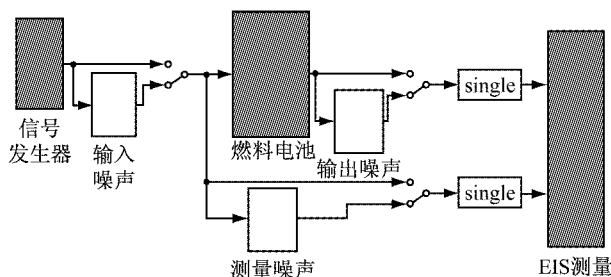


图 6 PEMFC 的 EIS 测量 Simulink 模型

Fig. 6 Simulink model of PEMFC EIS measurement

3.2 故障类型的构造

膜干和水淹两种 PEMFC 典型故障特征在 EIS 上呈现如下规律^[11]:膜干故障时,高频交点一定增大;电流密度不变时,水淹故障的发生一定会导致扩散环和极化环的增大. 然而,PEMFC 的 EIS 测量受采样精度和频率点数量的限制,实际很难区分扩散环和极化环. 因此,将扩散环和极化环统一考虑,即采用图 7 所示的电路拟合 EIS,用于表征 PEMFC 电化学机理的变化.

根据文献[5]Ballard-Mark-V 电堆的实验数据、

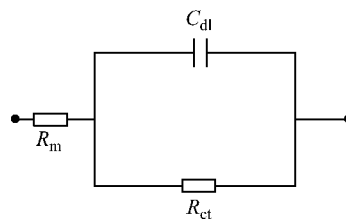


图 7 拟合 EIS 采用的等效电路

Fig. 7 Equivalent circuit used for fitting EIS

Freire 等人^[12]的实验结果和其他相关文献^[5,13-14]发表的实验数据,设置了 PEMFC 正常、膜干和水淹状态下的仿真模型参数,并进行了相关仿真实验. 每种故障类型产生 150 组数据,用于故障诊断方法的验证.

4 基于 EIS 的 PEMFC 组合模式识别故障诊断方法

基于 EIS 的 PEMFC 组合模式识别故障诊断流程如图 8 所示.

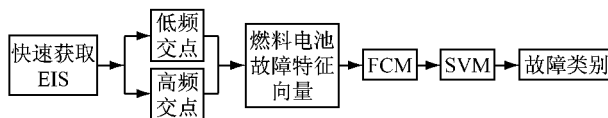


图 8 基于 EIS 的 PEMFC 组合模式识别故障诊断流程图

Fig. 8 Flow chart of combined pattern recognition method for PEMFC fault diagnosis based on EIS

具体步骤如下:

(1) 选取 9 个频率点的数据,采用最小二乘算法拟合快速获取 EIS;

(2) 提取 EIS 与实轴的两个交点(高频交点和低频交点)作为故障特征向量;

(3) 采用 FCM 算法对故障特征向量进行初步聚类,并剔除隶属度低于 90%的样本点,进行过滤;

(4) 在样本特征向量基础上,采用 SVM 对待测的故障特征向量进行分类,获取故障类别信息.

4.1 快速获取 EIS

通常一张完整的 EIS 频率范围为 1 Hz ~ 10 KHz,低频域数据点分散、采集耗时短,而高频域数据点集中、采集耗时过长,根据这个特点按表达式 $10 \times 2^i (i=1,2,\dots,9)$ (Hz) 选取 9 个特征频率点,绘制离散 EIS. 在搭建的 Simulink 模型上进行仿真时,干扰信号的标准差分别设置为 0.2 和 0.5 时,获取的 EIS 如图 9 所示. 图中平滑曲线是根据 PEMFC 模型参数绘制出的理想 EIS,圆点是加入干扰信号

后得到的9个离散EIS点。

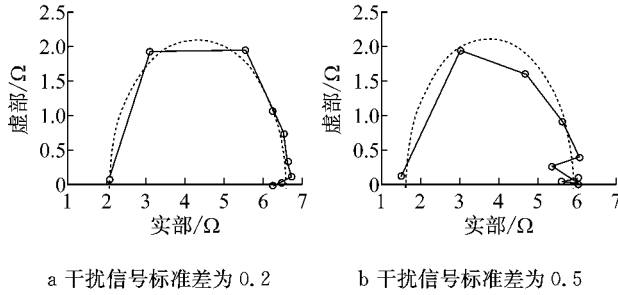


图9 不同干扰信号下的EIS

Fig.9 EIS under different disturbance signals

比较图9a和图9b可知,干扰信号对高频点影响较小,对低频点的影响较为严重.为了提高算法的精确度,对离散EIS点进行最小二乘拟合,将EIS拟合曲线和实轴的交点作为低频交点.对比拟合前后低频交点与理论交点的误差值,得到如图10所示的结果.图中,PEMFC状态为正常、膜干和水淹时分别以1,2和3表示;干扰信号的噪声标准差取值0.1,0.2,0.3和0.5.

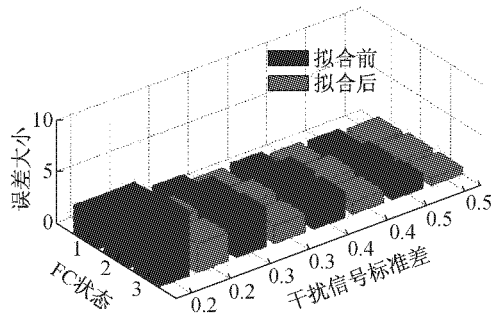


图10 拟合前后低频交点与理论值的误差

Fig.10 Error of low frequency intersection and theoretical value before and after the fitting

从图10可以看出,低频交点拟合后的误差值均小于拟合前的误差值,说明在低频区采用拟合的方法可以有效抑制低频点的“飘散”,提高算法准确性.

当采用同样的拟合方法对高频交点进行拟合时,拟合后的误差值大于拟合前的误差值,这是因为在高频部分受干扰信号的影响较小,拟合后的数据反而受低频区误差的影响而失真.

4.2 故障特征向量提取

由之前分析可知,PEMFC的不同故障类型在高、低频交点上出现明显差异,因此采用高频交点 x_1 和低频交点 x_2 两个值作为特征向量.

采用快速EIS方法时,为了提高算法的准确性,采用拟合后的低频交点作为 x_2 ;高频交点 x_1 仍采用拟合前的值.因此,PEMFC故障特征向量定义为 $\mathbf{x}=[x_1, x_2]$.

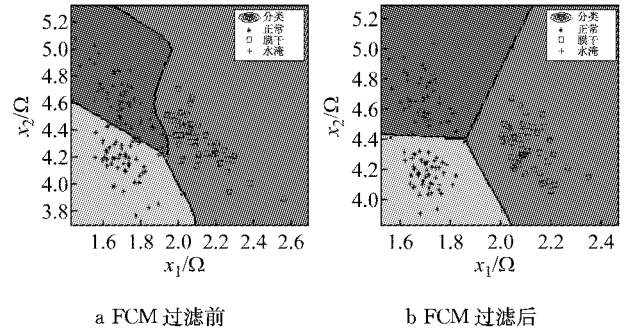
4.3 FCM初步聚类 and 过滤

为了提高故障诊断算法的准确度,在使用SVM进行模式识别之前需要确定模式数目,且SVM的支持向量越简单(直线分界线的支持向量比曲线分界线的支持向量简单),故障分类的效果越好.因此,需要对样本进行过滤处理,剔除隶属度不足90%的样本点,确定样本特征向量集.

当干扰信号标准差均为0.2时,在FCM对样本数据进行初步聚类后,剔除隶属度不足90%的样本点,过滤后的样本特征向量集用于SVM分类.

4.4 SVM对过滤后样本点进行分类

当三处干扰信号标准差均为0.2时,对过滤前后的数据采用SVM进行分类,效果如图11所示.



a FCM 过滤前

b FCM 过滤后

图11 SVM对过滤前后数据的分类效果

Fig.11 Result of SVM classifying for data before and after filtering

从图11b可以看出,经过过滤后的数据结构得到了优化,相比于图11a支持向量更加简单且错分更少.因此,采用FCM+SVM组合的模式识别方法提高了故障分类的准确性.

4.5 方法验证

干扰信号对模式识别的结果影响很大,如果采用FCM+SVM组合的模式识别算法能够对加大干扰的验证数据进行准确分类,则在一定程度上可以说明该算法的有效性.

当干扰信号的标准差均为0.3时,对FCM过滤前后的数据采用SVM进行分类,结果如图12所示.

由图12可以看出,FCM+SVM的组合模式识别方法可以有效减小噪声干扰,分类界面更简单,分类效果更为准确.

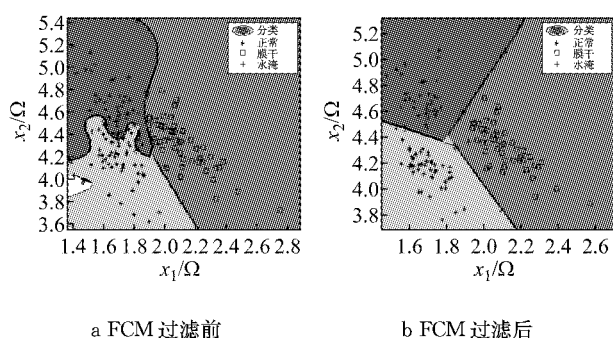


图 12 SVM 对过滤前后数据的分类效果

Fig.12 Results of SVM classification for data before and after filtering

5 结论

通过选取典型频率点并采用最小二乘拟合 EIS,可快速获取 EIS,提高低频交点的准确性;将 EIS 与实轴的两个交点作为 PEMFC 故障特征向量,用于表征 PEMFC 正常、膜干和水淹三种状态;采用 FCM+SVM 组合的模式识别算法对样本特征向量、待测特征向量进行聚类 and 分类,获取故障类别信息.采用已发表文献中的实验数据构造了故障模型并进行了仿真分析,结论如下:

(1) 采用快速 EIS 方法,当干扰信号标准差小于 0.2 时,可以得到较为准确的高频交点和低频交点;

(2) 干扰信号对低频点影响显著,对高频点影响相对较小;

(3) 采用最小二乘拟合 EIS 可以有效抑制干扰信号对低频交点的影响;

(4) FCM+SVM 的组合模式识别算法简化了分界线,提高了故障分类准确性.

参考文献:

- [1] Benouioua D, Harel F, Oukhellou L, *et al.* PEMFC stack voltage singularity measurement and fault classification[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2014, 39(36): 21631.
- [2] Li Zhongliang, Outbib R, Hissel D, *et al.* Online diagnosis of PEMFC by analyzing individual cell voltages [C]//Control Conference. Zurich: IEEE, 2013:2439-2444.
- [3] Li Zhongliang, Giurgea S, Outbib R, *et al.* Fault diagnosis and novel fault type detection for PEMFC system based on spherical-shaped multiple-class support vector machine[C]//IEEE/ASME. International Conference on Advanced Intelligent Mechatronics. Beasancón: IEEE, 2014:1628-1633.
- [4] Saleh F S, Easton E B. Diagnosing degradation within PEM fuel cell catalyst layers using electrochemical impedance spectroscopy[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2012, 159(5): 546.
- [5] Yuan X Z, Song C, Wang H, *et al.* Electrochemical impedance spectroscopy in PEM fuel cells[M]. London: Springer, 2010.
- [6] Lee C Y, Weng F B, Huang Y P, *et al.* Real-time monitoring of internal temperature and voltage of high-temperature fuel cell stack[J]. *Electrochimica Acta*, 2015, 161:413.
- [7] Campbell-Rance D S, Doan T T, Leopold M C. Sweep, step, pulse, and frequency-based techniques applied to protein monolayer electrochemistry at nanoparticle interfaces [J]. Journal of Electroanalytical Chemistry, 2011, 662(2):343.
- [8] 曲福恒. 模糊聚类算法及应用[M]. 北京:国防工业出版社, 2011.
- [9] QU Fuheng. Fuzzy clustering algorithm and its application [M]. Beijing: National Defence Industry Press, 2011.
- [10] Yang Y, Wang J, Yang Y. Exploiting rotation invariance with SVM classifier for microcalcification detection[C]//The IEEE International Symposium on Biomedical Imaging. [S.l.]: IEEE, 2012:590-593.
- [11] Brabanter K D, Karsmakers P, Ojeda F, *et al.* LS-SVM Matlab toolbox user's guide[EB/OL]. [2016-05-20]. www.esat.kuleuven.be/sista/lssvmlab/downloads/tutorialv1_8.pdf, 2011.
- [12] Zheng Z, Péra M C, Hissel D, *et al.* A double-fuzzy diagnostic methodology dedicated to online fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell stacks[J]. Journal of Power Sources, 2014, 271(271):570.
- [13] Freire T J P, Gonzalez E R. Effect of membrane characteristics and humidification conditions on the impedance response of polymer electrolyte fuel cells [J]. Journal of Electroanalytical Chemistry, 2001, 503(1/2):57.
- [14] Song J M, Cha S Y, Lee W M. Optimal composition of polymer electrolyte fuel cell electrodes determined by the AC impedance method[J]. Journal of Power Sources, 2001, 94(1):78.
- [15] Chevalier S, Auvity B, Olivier J C, *et al.* Detection of cells state-of-health in PEM fuel cell stack using EIS measurements coupled with multiphysics modeling[J]. Fuel Cells, 2014, 14(3):416.