

分类号：_____TP399_____学校代号：10150
UDC：_____密级：_____公开_____学号：20194045

大连交通大学

专业硕士学位论文

基于深度学习的燃料电池故障诊断及剩余寿命预测的研究

Research on the fault diagnosis and remaining life prediction for fuel cells based on deep learning

学 生 姓 名：_____宫克楠_____

校 内 导 师 及 职 称：_____徐克圣 副教授_____

行 业 产 业 导 师 及 职 称：_____周宏伟 高级工程师_____

专 业 名 称：_____计算机技术_____

研 究 方 向：_____新能源汽车大数据研究_____

论 文 类 型：_____应用研究_____

培 养 类 型：_____非全日制专业学位_____

论 文 答 辩 日 期：_____2022 年 5 月 31 日_____

学 位 授 予 单 位：_____大连交通大学_____

摘 要

近年来,随着能源短缺以及空气污染情况的加剧,质子交换膜燃料电池以其高效、零排放、强温度适应性等优点,在以汽车和船舶为代表的交通工具以及固定式发电站中得到了广泛的应用。然而由于发展历史较短,目前的燃料电池存在可靠性低、耐久性差的问题,严重制约了燃料电池的大规模商业化应用。开发高可靠性和长寿命的新材料、建立高精度的加工生产线以及实施精准的电池控制策略是提高可靠性和耐久性的有效措施。电池控制策略包括剩余使用寿命预测(RUL)和故障诊断(FD)策略等健康管理策略,这些策略可以及时发现影响燃料电池性能和寿命的异常条件或故障因素,提高燃料电池的使用寿命和可靠性。本文构建了燃料电池寿命试验数据和基于实车工况的故障模拟试验数据,提出了一种基于深度学习的燃料电池诊断模型和预测模型的构建方法,基于试验数据进行模型的训练及有效性验证。本文的主要工作和创新点描述如下:

1、对燃料电池的故障模式和衰减机理进行了分析与总结。根据上述研究结果设计了故障模拟实验得到故障模拟数据集。确定了数据集的预处理方法、输入参数的选择、燃料电池系统的故障指标以及老化指标。

2、研究了基于长短期记忆(LSTM)神经网络的燃料电池剩余寿命预测方法,比较了不同的神经网络及不同模型优化方法对于剩余使用寿命预测的影响,最后提出一种基于 PCA-BA-ATTENTION-LSTM 模型的燃料电池寿命预测方法。该方法能够实现长期寿命及短期寿命的离线预测功能,有助于降低评价燃料电池寿命的成本,及时维护燃料电池,调整燃料电池的设计方案、运行策略。

3、提出了基于 LSTM 神经网络的燃料电池在线故障诊断及恢复策略,该策略的提出对于燃料电池系统的水状态管理起到了重要的辅助作用,能够实现燃料电池系统故障在线诊断功能,利用经过筛选的传感器测量参数实现诊断功能并及时实施恢复策略。一方面避免了在燃料电池系统中增加复杂传感器,能够降低系统总成本;另一方面具有较高的诊断准确率,有助于提高燃料电池可靠性和耐久性。

上述研究结果表明,深度学习方法对于燃料电池的寿命预测和故障诊断有着很好地效果,在一定程度上解决了传统诊断预测方法过多依赖专家经验、诊断预测过程不具备普适性以及需要较多或者较贵的测量仪器设备等痛点问题。

关键词：燃料电池；深度学习；PCA-BA-ATTENTION-LSTM 模型；剩余使用寿命预测；故障诊断

Abstract

In recent years, with the aggravation of energy shortage and air pollution, proton exchange membrane fuel cell has been widely used in vehicles represented by cars and ships because of its advantages of high energy efficiency, zero emission and strong temperature adaptability. However, due to the short development history, the current fuel cell has the problems of low reliability and poor durability, which seriously restricts the large-scale commercial application of fuel cell. Developing new materials with high reliability and long life, establishing high-precision processing production lines and implementing accurate battery control strategies are effective measures to improve reliability and durability. The most important cell control strategies are health management strategies (PHM) such as residual service life prediction (RUL) and fault diagnosis (FD). These strategies can timely find abnormal conditions or fault factors affecting the performance and life of fuel cells, and improve the service life and reliability of fuel cells.

Aiming at the health management strategy of fuel cell fault diagnosis and remaining service life prediction, this paper is based on long-term fuel cell life test data and real vehicle fault simulation test data under multiple operating conditions. In this paper, a construction method of diagnosis model and prediction framework based on deep learning is proposed, and the measured data are used to train and verify the effectiveness. The main research contents and innovations of this paper are summarized as follows:

1. The failure mode and attenuation mechanism of fuel cell are analyzed and summarized. According to the above research results, a fault simulation experiment is designed to get the fault simulation data set. The preprocessing method of the data set, the selection of input parameters, the fault index and aging index of the fuel cell system are determined.

2. The residual life prediction method of fuel cell based on long-term and short-term memory (LSTM) neural network is studied. The effects of different neural networks and different model optimization methods on residual life prediction are compared. Finally, a fuel cell life prediction method based on PCA-BA-ATTENTION-LSTM model is proposed. This method can realize the off-line prediction function of long-term life and short-term life, help to reduce the cost of evaluating the life of fuel cells, timely maintain fuel cells, adjust the design scheme and operation strategy of fuel cells, and prolong the service life.

3. A fuel cell on-line fault diagnosis and recovery strategy based on LSTM neural network is proposed, which plays an important auxiliary role in the water state management of fuel cell

system. The advantage is that it can realize on-line fault diagnosis of fuel cell system, use the existing measurement parameters to realize the diagnosis function and recover the fault problems in time. On the one hand, it avoids adding complex sensors in the fuel cell system to reduce the total cost of the system; on the other hand, it helps to improve the reliability and durability of the fuel cell.

The above research results show that the deep learning method has a good effect on the life prediction and fault diagnosis of fuel cells. To a certain extent, it solves the pain points such as the traditional diagnosis and prediction methods rely too much on expert experience, the diagnosis and prediction process is not universal, and the need for more or more expensive measuring instruments and equipment. The test results of the fuel cell life prediction method proposed in this paper on the French fuel cell laboratory (FClab) data set and the proposed fuel cell fault diagnosis method on the simulated fault data set have achieved high prediction and diagnosis accuracy.

Key Words : Fuel Cell;Deep learning;PCA-BA-ATTENTION-LSTM model; Remaining useful life prediction; Fault diagnosis

目 录

绪论.....	1
1.1 研究背景及意义.....	1
1.2 燃料电池系统及电堆简介	3
1.2.1 燃料电池电堆.....	3
1.2.2 燃料电池系统.....	5
1.3 国内外研究现状.....	6
1.3.1 燃料电池衰减机理的研究现状.....	6
1.3.2 燃料电池故障诊断研究现状.....	7
1.3.3 燃料电池寿命预测研究现状.....	9
1.4 研究内容及章节安排.....	11
第二章 燃料电池寿命预测与故障诊断基础理论	13
2.1 燃料电池衰减与故障机理	13
2.1.1 燃料电池的衰减机理.....	13
2.1.2 燃料电池故障机理-水淹、膜干	15
2.1.3 燃料电池故障机理-燃料、氧化剂缺乏	16
2.2 燃料电池测试数据集.....	17
2.2.1 寿命数据集.....	17
2.2.2 水管理故障数据集.....	19
2.3 长短期记忆神经网络.....	21
2.4 注意力机制.....	23
2.5 超参数优化.....	24
2.5.1 网格搜索	24
2.5.2 随机搜索	24
2.5.3 动态资源分配.....	24
2.5.4 贝叶斯优化.....	24
2.5.5 进化算法	25
2.6 本章小结.....	25
第三章 燃料电池剩余使用寿命离线预测方法	26
3.1 神经网络模型建立过程概述	26
3.2 数据集预处理.....	27
3.2.1 模型的输入、输出参数选择.....	27
3.2.2 数据预处理.....	27
3.2.3 输入样本构造.....	29
3.2.4 数据集划分	30

3.3 基于 LSTM 神经网络的剩余使用寿命预测方法.....	30
3.3.1 激活函数及评价函数选择.....	30
3.3.2 训练算法选择.....	32
3.3.3 正则化.....	32
3.3.4 开发环境.....	33
3.3.5 LSTM 模型参数.....	33
3.4 实验结果.....	34
3.4.1 预测结果分析.....	34
3.4.2 模型性能分析.....	35
3.4.3 对照组实验.....	37
3.5 本章小结.....	39
第四章 改进的燃料电池剩余使用寿命离线预测方法	40
4.1 基于 PCA 的输入层优化.....	40
4.1.1 主成分分析计算步骤.....	40
4.1.2 基于 PCA 的优化步骤.....	41
4.2 基于注意力机制的结构优化	41
4.3 LSTM 神经网络超参数优化.....	43
4.3.1 贝叶斯优化计算过程.....	43
4.3.2 基于贝叶斯优化的 LSTM 超参数寻优步骤.....	44
4.3.3 动态资源分配.....	45
4.4 改进后的燃料电池剩余使用寿命预测方法	45
4.5 基于改进后的寿命预测方法的预测结果分析	46
4.5.1 主成分分析优化前后对比.....	47
4.5.2 注意力机制优化前后对比.....	48
4.5.3 贝叶斯算法优化前后对比.....	50
4.5.4 改进效果总结.....	51
4.6 本章小结.....	51
第五章 燃料电池水管理故障的在线诊断与恢复方法	52
5.1 燃料电池故障诊断流程.....	52
5.2 故障诊断模型的输入、输出参数	53
5.3 故障诊断模型的数据样本构建	55
5.4 水管理故障诊断模型的建立与训练	56
5.5 水管理故障诊断模型的编译与应用	57
5.6 基于水管理故障诊断模型的在线故障诊断结果分析	59
5.7 燃料电池在线恢复方法.....	65
本章小结.....	65
结论.....	66
参考文献.....	68

绪 论

本章对本文的研究背景、研究意义以及燃料电池的种类、应用场景、结构和原理进行了简要的介绍，并对燃料电池的故障诊断、性能恢复、寿命预测方法的国内外研究现状进行了详尽的调研。最后基于对这些方法的比较与分析，介绍本文的工作和章节安排。

1.1 研究背景及意义

近年来，汽车工业的快速发展极大的便利了人们的交通出行，但随之而来的，是地球石油资源的存储量正在逐年减少，全球气候变化导致的温室效应也在逐年的增加。这是由于使用石油能源的交通工具比例几乎占据了全部交通工具数量的 95%以上。为了实现人类社会的可持续发展，建立人与自然的和谐关系，改革能源结构，发展新型能源是世界各国的重大发展战略之一。

能源可以分为可再生资源 and 不可再生资源。煤炭、石油属于典型的不可再生资源，而风能、太阳能、水能可归属为可再生资源。尽可能多的使用可再生能源是未来发展的方向。尽管如此，对于风能、太阳能这些取之不尽的能源来说，如何利用它们已成为一个新的难题。氢能作为一种二次能源，可以在脱离太阳能、风能时仍然提供所需的能量，只需要通过转化装置，将太阳能、风能等可再生能源转化为氢能存储即可。如今，氢能作为可存储能源，被视为未来能源革命的颠覆性技术方向。而氢燃料电池则是实现氢能转换为电能利用的关键载体。

同时，为了控制环境污染、实现节能环保的可持续发展，“绿色”和“低碳”成为各国经济发展的主流目标，中国更是将低碳发展作为未来发展的核心主题，中国第十四个五年规划和 2035 年远景目标中提出了在 2030 年前碳排放达峰、2060 年前争取实现碳中和，壮大清洁能源相关产业的行动方案^[1]。顺应国家政策，响应国家号召，国内相关汽车企业纷纷宣布了新能源汽车的发展规划。新能源汽车的种类繁多，有纯电动汽车、混动汽车和燃料电池汽车。燃料电池汽车与其他新能源车相比，在环保和续航里程上都具备较高的优势，在表 1.1 中对比了燃料电池与动力电池和燃油车之间的优劣势。在众多的燃料电池类型中，质子交换膜燃料电池因其快速启动和适宜的工作温度而成为目前最具前景的燃料电池技术之一。本文所述的燃料电池都指的是质子交换膜燃料电池。

表1.1 燃料电池汽车优势对比^[2]

Table1.1 Comparison of advantages of fuel cell vehicles

类型	项目	燃料电池汽车	动力电池汽车	燃油车
环保性	全生命周期 CO ₂ 排放	< 125g/km	159g/km	> 180g/km
	环境污染	通过可再生能源制氢可实现零污染	无污染, 但上游部分污染	排放 CO ₂ 、CO、SO ₂ 等污染物
	噪音	低	极低	高
	能源再生	是	否	否
能效续航	全生命周期综合效率	29%	28%	14%
	燃料能量密度	40kWh/kg		12kWh/kg
	综合续航里程及充电时间	600km、5min	450km、快充 > 30min, 慢充 6-8h	600km、3min
	低温环境性能	-30C° 启动	低温里程损失 20%以上	-18C° 以上启动、-18C° 以下辅助启动

国外多家车企的燃料电池汽车业务纷纷宣布实现小批量生产并发售, 比如丰田的 Mirai 和现代的 NEXO, 截至 2021 年底, NEXO 的全球累计产量达 22,337 台, Mirai 的全球累计产量达到 17,933 台。国内燃料电池汽车的起步虽然较晚, 但近几年的上升速度也十分迅速, 图 1.1 展示了近年来的燃料电池汽车产销量, 可以看出无论是产量还是销量, 从 2016 年开始都表现出较大的涨幅。这标志着燃料电池汽车已经逐步由技术研发阶段进入到了商业化应用阶段。



图 1.1 2015 年至今的燃料电池汽车产销量

Fig.1. 1 Production and sales of fuel cell vehicles since 2015

尽管燃料电池在车辆领域中得到了大范围的应用，其可靠性和耐久性仍然是大规模商业化过程中的两个重要阻碍因素，现阶段针对可靠性和耐久性的提升方法，主要通过对于燃料电池的物理模型的不断研究积累专家经验，然而燃料电池是一个多学科交叉的复杂体系，对于燃料电池机理模型的建立，需要大量科研工作者长期深入的研究。如今，随着数据化时代的降临，人工智能、深度学习领域发展迅速。作为深度学习的典型代表，神经网络成为了对燃料电池这种复杂系统诊断及预测的有力工具。燃料电池反应涉及电化学、传热、传质以及从微观到宏观的两相流等多种现象。这种复杂性和多尺度的问题给建模带来了困难，增加了大量的计算时间。将神经网络应用于燃料电池技术领域的优势在于它能够以神经元之间的权重连接的形式轻松而快速地解决这一复杂性。神经网络求解后，计算速度非常快，精度也非常高。并且神经网络可以避开对燃料电池这个“黑盒子”的内部状态进行分析，直接通过其输入与输出的不断迭代，提高诊断和预测的精度，最终实现对于燃料电池状态的准确评价。

1.2 燃料电池系统及电堆简介

燃料电池当前多采用发展迅速的质子交换膜燃料电池电堆搭配为电堆提供稳定运行条件的供给的 BOP (Balance of Plant) 辅件组成燃料电池系统使用。燃料电池在催化剂的反应下，在环境温度较低条件下通过氢和氧的电化学反应将化学能转换为电能，副产物只有热量和水，甚至我们可以将生成的废热及废水进行二次利用提高能量利用效率。除了兼容性和零污染物排放外，燃料电池还具有能量密度高、充电时间短、集成度高、噪声低等优点。本节将详细介绍燃料电池系统、电堆、BOP 的组成以及运行原理。

1.2.1 燃料电池电堆

燃料电池电堆由多节单电池、集流板、端板及歧管等零部件组成，图 1.2 展示了一个燃料电池电堆的结构示意图。图 1.3 展示了一节单电池的结构示意图。

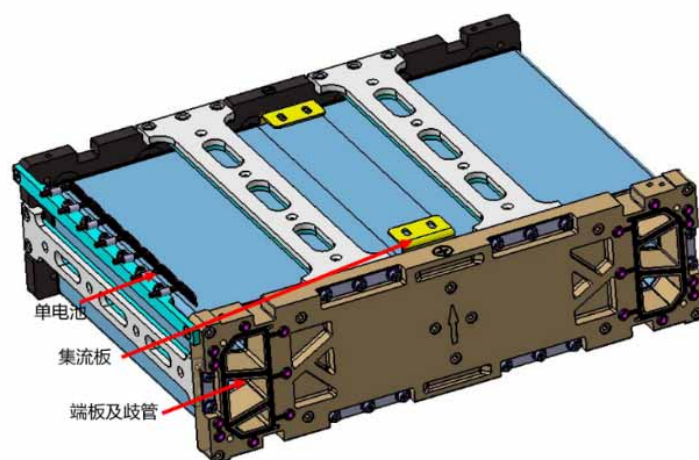


图 1.2 燃料电池电堆

Fig.1.2 Fuel cell stack

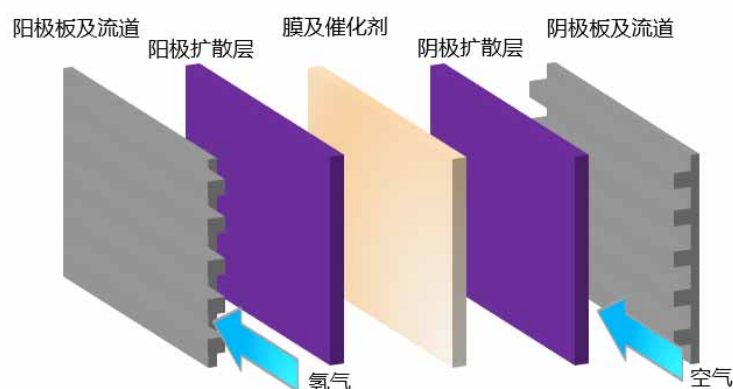


图 1.3 燃料电池单电池

Fig.1.3 one cell of fuel cell

如图 1.3 所示，每节单电池由两个双极板(BP)和一个膜电极组件 (MEA)组成，膜电极组件包含气体扩散层、微孔层、催化层以及质子交换膜。双极板分为两面，一面是阴极板、一面是阳极板，分别用于氢气、空气的流动，中间是冷却水，用于堆内产生热量的冷却。

在膜的两侧分别是阴阳极催化层，燃料电池的电化学反应主要就发生在催化层上，目前一般采用碳载铂作为催化剂；在催化层的两侧是由多孔介质构成的气体扩散层。反应气体需要通过扩散层以均匀的扩散到催化层上，并且电池反应生成的水也需要经由扩散层排出，若排水性能受到影响，则会发生“水淹”现象以影响电池性能。目前

一般采用具有疏水性的碳纤维纸或碳纤维布作为扩散层材料；极板是燃料电池电池的终端连接，其作用是传输电子、传输、分离阴阳极气体，使气体均匀分配且不直接接触，同时对于生成的水和热量，双极板能够及时去除水和热量，防止两者在任意位置累积。从电堆组装层面来说，双极板还起到承受电堆的组装力，支撑 MEA 的作用。

燃料电池反应过程的化学方程式主要包含以下两个半反应，（1.3）描述了总反应过程：

阳极：



阴极：



总反应：



氢气在阳极发生产生氢离子和电子，氢离子通过质子交换膜传输到阴极，电子通过外电路传输到阴极，电子在外电路传导时产生电能，参与阴极半反应。氧气在阴极发生与氢离子结合生成水。这个过程中水既起到了传输氢离子的作用，又会造成阻碍氢气和氧气物质传输的结果。在燃料电池运行过程中，燃料电池膜中的水受到电渗透和反扩散的影响，即膜中的水可以通过电渗透从阳极移动到阴极，但也可以由于水浓度差的作用而向相反的方向移动。在这里，如果电渗透的水传输速率大于从阴极到阳极的反向扩散的水传输速率，则会发生膜脱水，从而增加阻力。此外，由于水是通过膜的阴极侧的电化学反应产生的，如果水的排出速率大于从电极到外部的水传输速率，也可能发生脱水，导致性能再次下降。因此，如果膜湿度保持在适当的值，可以提高电解质中的离子电导率，提高燃料电池的效率。水的平衡对燃料电池的正常运行具有重要意义，燃料电池内的水如果偏离平衡就会导致无法正常工作。所以燃料电池的一个关键技术问题是水管理的研究。

1.2.2 燃料电池系统

燃料电池系统可分为几个子系统，包含供氢、供气、水热管理系统、电气和控制子系统。其中供氢系统和供气系统为电化学反应提供燃料和氧化剂，而热管理系统将电池温度保持在合适的范围内，加湿模块增加反应气体的湿度以改善电堆性能。每个子系统的协同运行可以共同影响燃料电池的整体运行状况，由于材料、堆栈和部件之

间的这种耦合关系，燃料电池系统的运行状态不仅与燃料电池本身有关，而且还与每个子系统的设计和管理策略有关。

考虑到经济性和安全性，质子交换膜燃料电池通常采用阳极脉冲排气方案和氢气再循环模式相结合的方式，氢再循环供氢系统通常由氢气瓶、高压阀组、一个氢气循环泵或喷射器和一个分水器组成，分水器将阳极出口处的液态水分离，避免过多的液态水循环到阳极入口。此外，阳极再循环还可以降低氢耗、保持阳极和阴极之间的压差以及保持膜湿度。

燃料电池供气系统的基本组成包括空压机、节气门和供气管路。绝大多数系统还包含增湿器、中冷器和空滤器。供气系统通过调节空压机转速和节气门的开度来提供所需的进气压力和流量。空滤器可防止气流中的大颗粒进入空压机，从而提高系统寿命。

电气子系统通过 DC-DC 控制电堆输出，控制子系统负责协调所有电子控制部件的操作，同时考虑车载燃料电池系统的经济性、性能和可靠性。控制子系统相当于燃料电池系统的大脑中枢神经，是最重要的组成部分。

燃料电池的温度变化会影响气体传输、水平衡和电化学反应活性，并降低 MEA 的耐久性。理论分析和实验结果都表明，随着温度的升高，尽管活化壁垒会减小。但是温度升高还会导致膜脱水和阴极催化层中电化学反应活性中心的减少。因此，燃料电池的热管理至关重要。热管理系统通常由冷却水泵、散热器、管路以及三通阀组成，冷启动时额外需要 PTC 加热器。运行时通过调节冷却水泵的转速和电子恒温器的开度来控制系统散热，保证燃料电池在合适的温度下运行。

1.3 国内外研究现状

1.3.1 燃料电池衰减机理的研究现状

在预测质子交换膜燃料电池的性能之前，应该先研究燃料电池的退化机理以及操作条件对电池的影响。

J.Park 等人综述了气体扩散层(GDL)的耐久性和退化机理,讨论了降解的机械和化学方面^[3]。Jung 等人利用加速降解技术(ADT)试图阐明膜电极组件(MEA)的降解机理^[4]。作者证明了碳载体的降解是降解的主要来源。关于操作条件的影响，T.Zhang 等人综述了燃料电池在启停操作条件下的退化情况^[5]。裴普成等人^[6]回顾了燃料电池在耐久性试验过程中的退化情况，研究了操作参数对其性能的影响。S.Komini 等人对启动和停机退化机理进行了研究^[7]，进一步的研究表明，限制阳极将氧还原为水的能力是减缓降解

的关键。D.Garcia-Sanchez 等人进行了负载循环测试,以演示负载分布对燃料电池退化的影响^[8]。在基本退化分析的基础上,建立了几种退化模型,为进一步研究奠定了基础。Chen 等提出了一种新的包括车用燃料电池电流、湿度、温度和氢气压力的退化模型^[9]。V.Zaccaria 等研究了燃料电池的降解机理,设计了一种新的运行策略,使燃料电池的降解降到最低^[3]。

1.3.2 燃料电池故障诊断研究现状

文献[10]中将燃料电池故障诊断方法分为三类:基于分析模型的故障诊断方法、基于信号处理的故障诊断方法和基于专家知识的故障诊断方法^[10]。在这些类别中,包含数据驱动诊断的基于专家知识的方法更有吸引力,因为它在类似于工业应用方面具有较大优势。涉及复杂两相电化学反应的质子交换膜燃料电池(燃料电池)分析模型的不准确性是数据驱动方法更受青睐的另一个原因。

文献[11]中将故障诊断方法分为五大类,基于分析模型的方法、基于黑盒模型的方法、基于数据驱动的方法、统计方法和实验测试方法。文献中阐述了包括水淹、膜干、高温梯度、局部热点、燃料缺乏、碳腐蚀、铂氧化、CO 中毒、降解、电池反极等在内的燃料电池故障种类^[11]。

文献[12]开发了一种快速 EIS 测量系统,该系统基于电流脉冲注入电路将最长序列扰动电流集成到燃料电池中。同时,利用连续小波变换和极大似然估计实现了 EIS,将 EIS 提取的参数作为故障诊断的特征,在此基础上提出了一种基于二叉树支持向量机分类器的多故障诊断方法,实现了准确、快速的故障诊断。此外,文献[13]将动态 EIS 应用于燃料电池电堆和单电池运行的诊断和监测,可以快速区分动态系统中的故障源。在此基础上,在电流动态模式下进行阻抗测量,允许同时采集动态系统中单个 FCS 和整个电堆的阻抗,以识别其是健康的还是故障的。该方法使用多频扰动信号。它由许多具有不同频率、幅度和相移的基本信号组成。通过使用正弦激励的叠加,理论总阻抗采集时间缩短到最低频率分量的周期^[13]。采用由 10 个单电池组成的实验燃料电池电堆进行测试和控制,并在此基础上验证了该方法对电堆效率降低的诊断和故障源的识别。

文献[14]将电流密度分布和 EIS 相结合用于负荷水平和供气条件的估计,可以有效地利用这两种方法的优点,在不影响电堆正常运行的情况下,实现对故障机理的改进和深入分析,且灵敏度高。特别地,基于对电堆电堆下有源区电流密度分布的分析与 EIS 的关联,可以在不影响单个电堆性能的情况下实现故障诊断。

文献[15]提出了一种混合故障诊断方法,以提高可诊断故障的程度和诊断准确率。针对质子交换膜燃料电池系统的供气系统,根据执行器、传感器和管道故障等相关部件和位置,定义和诊断了供气系统的6种故障类型。该方法在基于模型的诊断方法中使用人工神经网络分类器作为基于数据的诊断工具,该方法依靠残差模式来解决基于模型的诊断方法(初始故障诊断精度不足)和基于数据的诊断方法(需要大数据集才能生成分类器)的局限性。

文献[16]中提出了一种基于数据的球形多类支持向量机(SSM-SVM)策略来实现对不同健康状态的故障分类,其中 FDA 用于从单个电池电压中识别特征。这样的诊断方法可以从潜在的新聚类中检测数据,而不需要补充过程。在离线训练阶段, FDA 和 SSM-SVM 模型都可以根据分布在不同类别的训练数据库(通过电池电压的历史样本建立)进行有效的训练。与 SSM-SVM 类似,有文献提出了一种称为有向无环图支持向量机(DAG-SVM)的多类分类方法^[17]。可以有效地从原始数据中识别出有用的特征进行故障诊断。在此基础上,提出了一种结合正交线性判别分析(OLDA)和相关向量机(RVM)的水管理故障诊断方法^[18],利用 OLDA 进行特征提取,以单体电池电压为诊断变量,实现了水管理故障诊断^[18]。此外,利用 RVM 实现了各种类型的低维特征分类,并基于从 90 个单元的燃料电池堆中提取的实验数据库,应用该策略实现了高精度的在线自适应水淹故障诊断。此外,基于 Dempster-Shafer 证据理论的极限学习机(ELM)用于燃料电池系统的快速故障诊断^[19],其中 K-ELM 算法和 OS-ELM 算法用于建模,DS 证据理论用于诊断输出融合。用于验证的数据库来自实验室 14.4kW 液冷燃料电池试验台,在该测试台上对四种不同等级的空化学计量比进行了准确的诊断。

文献[20]提出了一种基于模糊逻辑和电化学阻抗谱的燃料电池故障诊断方法,从质子交换膜燃料电池的故障机理推导模糊逻辑,避免了以往研究中使用的不一致甚至冲突的模糊规则^[20]。此外,还研究了该方法在识别不同的质子交换膜燃料电池故障和不同级别故障时的有效性。文献[21]首次提出了其在线故障诊断的评价标准,可实现多路信号的精确测量。该方法是在电堆电压信号处理的基础上,基于强大的特征提取和模式分类技术实现的。分别在 1kW 和 10kW 测试台上进行了膜干、水淹、短路、冷却系统故障、过高空气化学计量比、过低空气化学计量比和一氧化碳中毒等 7 种不同故障的诊断^[21]。

主成分分析(PCA)方法可以有效地降低过程变量的维度,同时保留变量中最有价值的信息。文献[22]结合主成分分析和多个传感器变量,该方法主要由两个步骤组成,首先在充分样本数据训练的基础上确定各种传感器信号之间的相关性,然后基于简化的综合指标设计在线故障诊断的主体结构^[22]。在此基础上,对电压传感器故障和系统级

故障进行了诊断和处理，并对其具体性能进行了验证。特别是，该方法能够根据简化的综合指标及时诊断和识别故障，防止电堆因运行效率低下而严重损坏。在此基础上，分两步快速识别单个传感器故障和严重系统故障两种典型故障，即首先基于训练数据提取传感器信号特征，然后设计基于在线诊断策略的简化统计指标。

文献[23]提出了一种基于外部磁场测量的非侵入式识别电堆电流分布的策略，其中采用了截断奇异值分解技术来稳定电流。基于安装在质子交换膜燃料电池电堆周围三个区域的高灵敏度、高动态的磁传感器，设计并应用了一套对电流不均匀性敏感的传感器。这项工作使用了 30 个传感器对由 100 个单电池组成的燃料电池电堆进行磁层析成像，在此基础上可以根据磁场定位燃料电池电堆的各种故障，如水淹故障和膜干故障。

文献[24]提出了一种基于叠加原理的故障诊断方法，该方法将电堆压降作为反映线性系统变为非线性系统时系统非线性程度的重要指标。为了检测急剧的电池压降，电堆由比工作电堆电流更小幅度的两个输入直流测试电流激励。该方法建立了一种基于叠加原理的电堆退化诊断仿真模型，将电堆的线性和非线性情况分别定义为正常状态和异常状态。在 MATLAB/SIMULINK 测试环境下，通过静态实验和动态实验进行了实验验证。未来的研究可以集中在智能决策器的设计和应用上，其目的是结合模糊逻辑和人工神经网络(ANN)开发改进的诊断策略。文献[25]设计了一种基于温度分布的故障诊断技术，搭建了人工神经网络(ANN)，通过训练神经网络模型用于水淹和膜干故障定位和评价，具有简单方便的优点。

1.3.3 燃料电池寿命预测研究现状

目前的预测方法可以归纳为基于模型的方法、数据驱动的方法和混合方法。基于模型的方法是基于物理模型来研究燃料电池的寿命预测。文献[26]提出了一种新的包括车用燃料电池系统电流、湿度、温度和氢气压力的退化模型。文献[27]提出了一种新的故障树方法来分析燃料电池的临界退化机理，并将其应用于建立预测模型。但是，上述方法没有考虑质子交换膜燃料电池的特殊性，燃料电池的活化恢复现象会影响预测精度。

文献[28]提出了三种经验模型，包括线性模型、对数模型和指数模型来近似老化过程。并在粒子滤波框架下进行预测，以估计质子交换膜燃料电池的RUL。文献[29]通过引入健康状态的两个指示器，从极化曲线导出了退化模型。通过扩展卡尔曼滤波(EKF)预测燃料电池的未来性能和剩余寿命。文献[30-31]提出了考虑欧姆损失、反应活性损失和传质损失的多物理老化模型，提出了一个由参数提取过程和粒子滤波方法组成的

预测框架,实现了恒定工况下的 RUL 预测。文献[32]应用高斯过程状态空间预测动态模型的内部时变参数。此外,基于扩展卡尔曼滤波(EKF)的基于观察者的预测算法被用于估计不同负荷下的实际健康状态,并通过量化不确定性来验证可靠性。混合预测方法实际上也是基于模型的预测方法,它们都需要人为的建立精准的物理模型,而燃料电池的实际运行涉及多尺度区域内中性物质(例如 H_2 、Air、蒸汽和液态水)、带电物质(例如电子和离子)和热能(例如尺寸从几毫米到几十厘米的流动通道和长度为纳米和微米的多孔介质)的复杂传输现象,模型的建立复杂且需要具备较高的精度。因此,基于深度学习的数据驱动方法由于能够直接从实验数据中学习来进行预测,不依赖于系统行为模型,克服了物理模型的缺点,近年来受到越来越多的关注。

文献[33]开发了一种基于回声状态神经网络的预测算法,该神经网络能有效地学习实测数据的非线性退化趋势,总体预测误差控制在 5%以内。然而,这种神经网络缺乏推理能力,这可能会影响预测能力。文献[34]通过在时变模型空间中实现集成回声状态网络,建立了质子交换膜燃料电池的自适应预测方法。应用模型识别法对动态加载循环试验数据提取健康指标,并以此建立预测模型。文献[35]建立了基于数据融合的预测方法。该方法将退化数据集分为线性部分和非线性部分,分别用自回归滑动平均和时延神经网络进行处理。文献[36]提出了一种基于小波方法和组群网络处理方法的短期预测方法,可以达到较高的预测精度。

由于准确性,深度神经网络已逐渐应用于预测。文献[37]成功地应用 LSTM 神经网络对燃料电池系统进行预测,预测结果的准确度非常高。文献[38]开发了一种基于 G-LSTM-RNN 的在线数据驱动方法,通过从退化数据中学习实现对燃料电池的预测。文献[39-40]采用回声状态网络(ESN)预测燃料电池的性能和寿命,在 ESN 模型中,输入权值和内部权值都是随机稀疏矩阵,一旦确定了它们的结构,就不需要对它们进行训练。在文献[39]中分析了操作参数对预测精度的影响,在文献[40]中比较了三种类型的 ESN 及其性能。在上述数据驱动方法中,都利用电堆电压作为健康指数。文献[41]提出了一种基于注意力的递归神经网络(RNN)模型来提高燃料电池的预测能力,该模型能够基于原始的长期动态加载循环耐久性试验数据准确地预测燃料电池的输出电压退化。特别是对不同预测模型,即长短期记忆(LSTM)、门控递归单元(GRU)、基于注意力的 LSTM 和基于注意力的 GRU 的预测结果进行了比较。文献[42]提出了一种具有注意力机制的双向长短期记忆递归神经网络(BILSTM-AT)模型来预测燃料电池电堆的输出电压退化。采用随机森林回归模型提取基本变量作为模型的输入,预测区间是用 dropout 方法推导出来的,模型参数采用最优化方法确定。利用两个质子交换膜燃料电池电堆

的测试数据，将所提出的模型与现有的一些模型进行了比较。文献[43]开发了一种深度信念网络(DBN)构建燃料电池性能预测的数据驱动模型，取得了较好的预测效果。

1.4 研究内容及章节安排

通过文献调研，可以发现故障诊断方法与剩余寿命预测方法有差异性也有极大的相似性，两者都可以分为基于机理模型、基于数据驱动模型和基于机理及数据驱动混合模型三种方法，两者的数据驱动模型都通过自主学习燃料电池运行过程中参数的变化趋势分析燃料电池的健康状态。故障诊断的研究方向侧重于在线诊断与短期提前预测，能够通过实时更新的运行数据以及系统历史状态参数诊断出燃料电池系统的潜在故障或者已经发生的故障并将其输出到控制器，控制器会按照故障类别执行预设的恢复策略，使得燃料电池不会因为故障状态的累积引发更加严重的故障发生不可逆的损伤。剩余使用寿命的预测分为长期预测和短期预测，多用于具有整车离线数据上传记录功能的云端平台，利用一段时间的燃料电池行驶数据记录提取燃料电池深层次的特征参数进行寿命预测，根据预测结果制定合理的整车能量管理策略和定期维护保养策略。本文的章节安排如下所示：

第二章，首先研究了燃料电池的老化、故障机理以及表现形式，然后根据老化、故障的表现形式，确定了本次研究所需的老化、故障数据集，其中老化数据选用法国燃料电池实验室的动态老化数据集，故障数据选用通过实车工况条件进行正交实验得到的模拟故障数据集。最后对老化及故障的诊断预测采用的算法原理进行了说明，介绍了 LSTM 神经网络以及注意力机制的原理、超参数优化方法。

第三章的内容在基于第二章的理论基础上，重点研究了 LSTM 神经网络在预测燃料电池剩余使用寿命方面的应用，对测试数据进行平滑及精简预处理操作并建立了堆叠式 LSTM 神经网络预测模型，通过测试结果的数值分析和与其他模型的对比实验验证了堆叠式 LSTM 模型的有效性，也提出了模型需要改进的方向。

第四章的内容在基于第三章的模型数值分析基础上，对基于 LSTM 神经网络的燃料电池寿命预测模型进行优化，采用主成分分析方法优化模型的输入层特征变量，采用注意力机制优化神经网络结构，采用贝叶斯优化方法优化神经网络的超参数。通过优化前后的数值对比，验证了优化方法的有效性，最终提出基于改进的 LSTM 神经网络的燃料电池离线寿命预测方法。

第五章提出了燃料电池水管理故障的在线诊断及恢复方法，故障诊断本质上是一种短期的寿命预测，因此可以与寿命预测类似使用相近的神经网络模型。本章在建立

了燃料电池故障诊断模型后，分别使用故障模拟数据离线训练并测试模型，然后将训练好的模型编译写入车载嵌入式平台进行实车工况下的在线诊断测试，通过阻抗仪的诊断结果验证了故障诊断模型的有效性。

结论章对本文的主要内容进行了总结性的阐述，对于其中的不足之处以及改进方向做出了说明。对于未来的研究方向进行了展望并对后续工作作出了计划。

第二章 燃料电池寿命预测与故障诊断基础理论

燃料电池运行系统由燃料电池电堆与 BOP 辅件共同组成的，燃料电池运行过程中的健康状态会受工况条件、BOP 故障以及由于电堆自身的故障多重的影响，其中许多因素具有耦合的关系，不同的故障原因可能导致相近的影响结果，这不利于诊断和预测，为了准确的预测剩余寿命、诊断燃料电池故障，首先需要了解燃料电池衰减机理和故障机理。本章我们首先通过文献调研研究了燃料电池的衰减、故障机理以及表现形式，然后根据衰减、故障的表现形式，采集了本次研究所需的老化、故障数据集，其中老化数据选用法国燃料电池实验室发布的动态老化数据集，故障数据选用通过故障模式分析、正交实验得到的模拟故障数据。最后对寿命预测及故障诊断采用的算法原理进行了说明，介绍了本文使用的 LSTM 神经网络，注意力机制的原理、超参数优化方法的选择等计算机基础知识。

2.1 燃料电池衰减与故障机理

理解清楚燃料电池的衰减机理和故障机理对于减少燃料电池衰减、提高耐久性起到了重要的作用，对于寿命预测和故障诊断及恢复的方案设计也有着重要的价值。燃料电池的衰减可以总结为工况导致的衰减和材料自身的衰减。燃料电池故障可以总结水淹、膜干、局部热点、燃料及氧化剂缺乏、CO 中毒等现象。本节主要针对恶劣运行工况包含的衰减机理，故障机理中的水淹、膜干和燃料及氧化剂缺乏进行深入分析。

2.1.1 燃料电池的衰减机理

燃料电池的衰减主要发生在 MEA 上，恶劣的使用工况会加速燃料电池的衰减。燃料电池车辆常用的恶劣使用工况包括启停、怠速行驶、反复变载（加减载）等，不同的使用工况包含不同的衰减机理，燃料电池在恶劣工况的衰减机理如表 2.1、表 2.2、表 2.3 所示^[44]。

表 2.1 燃料电池启停工况的衰减机理

Table2. 1 Attenuation mechanism of fuel cell in start-stop condition

工况	衰减特点	衰减结果
启停	非均匀碳载体腐蚀	质量传输受限、电化学面积降低、碳腐蚀
		阴极催化层结构塌陷、质量传输受限
低温启动	水结冰破坏反应气体传输通道	结构塌陷导致质量传输受限，极化增加
	冻融使 MEA 会产生物理形变	电化学活性面积降低
	催化层与膜、GDL 之间分离	接触电阻上升

表 2.2 燃料电池变载工况的衰减机理

Table2. 2 Attenuation mechanism of fuel cell under variable load condition

衰减部件	衰减特点	衰减结果
膜	高载荷下，电极反应和电拖曳使得膜吸水。 低载荷下，膜缺水，形成了应力循环	膜机械疲劳，加速气体交叉
GDL	受应力作用，GDL 与催化层分层	接触电阻变大、性能降低
Pt 催化剂	电位的反复变化导致催化剂形貌变化，电化 学活性面积降低	性能降低
催化剂碳载体	变载工况容易导致气体饥饿，氢气缺乏时， 阳极发生碳氧化反应和析氧反应，氧气缺乏 时，阳极产生析氢反应	阴极碳腐蚀、阳极电位上 升，整体电压下降

表 2.3 燃料电池开路、怠速工况的衰减机理

Table2. 3 Attenuation mechanism of fuel cell in open-circuit and idle conditions

衰减部件	衰减特点	衰减结果
膜	通过芬顿反应产生自由基，自由基攻击质子膜	膜气体交 叉，寿命降 低
	由于局部热点和膜的应力应变产生的开裂或针孔	
催化剂	阴极高电位，Pt 表面的 Pt 失电子变成 Pt 离子，活性面积减小	性能降低
	Pt 离子由于浓度梯度扩散传输，同时在聚合物内被还原沉积，形成 Pt 带，活性面积减小，同时影响了膜的导电能力和稳定性	
	Ostwald 熟化，活性面积减小，Pt 催化剂颗粒的界面能减小	

2.1.2 燃料电池故障机理-水淹、膜干

燃料电池中水的分布至关重要，它影响着膜和电极之间的通道传输稳定性和效率。由于对水平衡的任何扰动都可能导致包括可能影响系统输出性能和可靠性的电池水淹或膜干的内部故障，因此水管理是燃料电池系统运行期间最复杂和关键的任务之一。水淹是最常见的故障，多发生于属于产水区的阴极，在燃料电池的运行过程中，大水滴的聚集会阻碍流道内的水传输，燃料电池内部水逐渐增多，造成内部局部气体不足，电流分布不均，最终导致电池一致性差，性能的衰减也会增加。相反，当膜不能充分水合时，可能会发生膜干故障，这会导致膜电阻增加，增加欧姆损失，并且可能进一步增加电堆局部的热量产生。长期膜干还会加速质子交换膜的物理降解，导致膜产生裂纹甚至穿孔，膜两侧气体交叉，严重影响输出性能和剩余使用寿命。

对于水淹及膜干故障的深入分析，首要了解的就是质子交换膜燃料电池中的主要水传输机制，燃料电池内部的水传输模型如图 2.1 所示，1) ~ 4)对这四种水传输机制进行了详细的描述，其中，电渗拖拽和反向扩散起到主要的作用。

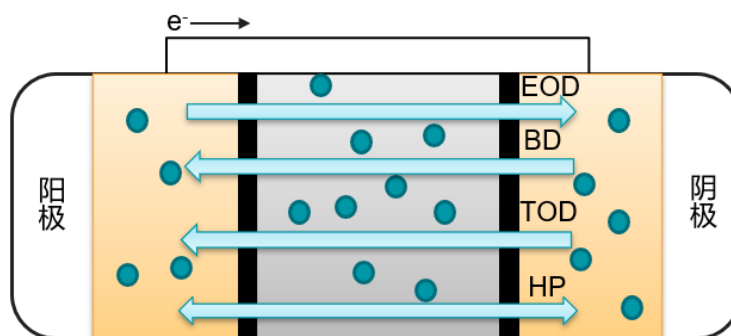


图 2.1 燃料电池内部的水传输机制

Fig.2.1 Water transfer mechanism in fuel cell

1) 热渗透(TOD)

热渗透是由燃料电池中膜的温度差异引起的^[45-47]。在燃料电池运行过程中，质子交换膜上会出现温度梯度，水流是从冷区流向热区^[48]。另外，一些学者认为 TOD 的主要机理之一是热管的作用。这种热管效应主要存在于燃料电池中的催化剂层，它是由水的蒸发引起的，水以蒸汽的形式移动，然后由于电池中温度梯度的降低而沿路径冷凝。水的这种运输方式在燃料电池的启动和关闭期间很重要^[49]。

2) 电渗拖拽(EOD)

质子沿着膜从阳极移动到阴极区域,水分子同时被携带通过膜。水被质子拖过膜的过程称为电渗透拖曳^[50-52]。如前所述,水管理问题会影响燃料电池的性能,膜的水合性会增加质子传导性。但当膜中水过多时,EOD 现象的存在会导致燃料电池中的水泛滥,从而影响电化学反应速率并导致电池效率下降^[53]。EOD 系数表示为在没有压力和浓度梯度的情况下质子沿膜传输时 1mol 质子携带的水的摩尔数^[54]。费娜等人^[55]通过 ENMR 方法研究了 Nafion 膜上的水平衡,以确定 EOD 系数。结果表明,Nafion 膜内水的 EOD 系数取决于 Nafion 膜的含水量和所使用的阳离子的种类。Zhiping.li 等人^[56]研究发现,电渗阻力系数随着温度在 20℃和 90℃之间线性增加。

3) 水的反向扩散(BD)

这种类型的水传输是在阴极区域产生的过量水扩散到阳极区域的结果。由于燃料电池中的水浓度梯度^[57-58],水从阴极沿膜空隙扩散回来。除了水浓度梯度外,膜厚度和过膜的压力梯度是决定 BD 系数的因素^[59]。还进行了实验研究来测量水的反向扩散系数^[60]。早期进行的研究显示测量值之间存在巨大差异^[60],Majsztrik 等人使用各种方法测量了不同的速率过程,得出结论是这些差异归因于所应用的测量技术。

4) 水力渗透(HP)

在燃料电池中,由于阳极和阴极区域之间的压力梯度,会发生水力渗透。由于毛细管压差或气相压差,这会导致膜中的水通量增加^[61]。Amayol 和 Bahrami^[62]指出,如果燃料电池以这样的方式加压,使燃料气体(阳极侧)的压力低于氧化剂气体(阴极侧),这可能有助于减少阴极水含量。

2.1.3 燃料电池故障机理-燃料、氧化剂缺乏

在加载过程中,由于 BOP 辅件的能力限制,反应物的供给落后于电流的增加。因此,快速的加载会导致严重的气体缺乏。对于空气侧来说,当燃料电池产生强制电流,但空气供应不足时,由于氧气不足,一些质子从阳极迁移到阴极,不能参与氧还原(ORR)反应。因此,空气缺乏的区域会发生析氢反应(HER)^[63],在空气缺乏的条件下阴极废气中存在氢气释放证实了这一点。阴极析氢反应会导致阴极电位的突然降低从而导致燃料电池的输出电压降低。

对于氢气侧来说,加载过程中氢气的轻微短缺可能会放大氢气分布的不均匀性,导致局部燃料缺乏,局部压力降低,从而导致空气跨膜的渗透加强。最终在阳极上出现了氢空界面,加剧了阴极的碳腐蚀,尤其是在对应局部饥饿区的局部区域。

此外，燃料电池中反应物的分配在电堆的不同位置之间、电堆的气体入口和出口之间、甚至在脊区和沟区之间是不均匀的，在活性面积较大的燃料电池中这种现象会加剧。在加载过程中，不均匀的分配现象更加严重，因此导致燃料、氧化剂的缺乏非常容易发生。空气缺乏和燃料缺乏同时会导致水管理故障的发生并加速燃料电池的衰减。

2.2 燃料电池测试数据集

本文采用的数据集分为两部分，用于寿命预测的数据集选用 FClab 提供的公开数据集，用于故障诊断的测试数据集选用基于故障模拟实验得到的测试结果。这两个数据集分别在 2.2.1、2.2.2 中介绍。

2.2.1 寿命数据集

本文采用法国燃料电池实验室 FClab 提供的燃料电池寿命衰减数据^[64]，这组数据是在燃料电池测试台上进行的，燃料电池的测试台如图所示，整个燃料电池电堆是由 5 个单电池组成的，其中每个单电池的有效面积是 100cm^2 。寿命测试的操作条件如下：运行温度控制在 60°C 左右，阳极和阴极的绝对压力控制在 150kPa ，相对湿度维持在 $50\%\text{Rh}$ ，反应气体的化学过量比控制在 1.5-2 之间。

数据分为命名为 FC1 的电池运行恒定条件的静态数据集与命名为 FC2 的电池在动态条件下测试的动态数据集。FC1 在恒定条件下运行，对电堆施加 70A 的电流运行共计 991h 。在时间 $t = 0, 48, 185, 348, 515, 658, 823, 991$ 小时分别测试极化曲线、阻抗测试。测试工况如如图 2.2 所示：

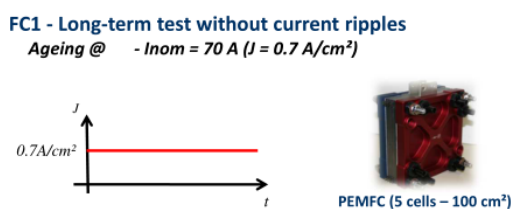


图 2.2 FC1 测试工况

Fig.2. 2 FC1 testing conditions

FC2 是在动态条件下运行的，设置负载电流使其在恒定电流 70A 的基础上加上一个高频波纹电流（ 5kHz ，幅值为 $\pm 7\text{A}$ ）。测试工况如如图 2.3 所示：

FC2 - Long-term test with high frequencies current ripples
 Ageing @ - $I_{nom} = 70\text{ A}$ ($J = 0.7\text{ A/cm}^2$)
 - Triangular current ripples: $\pm 10\%$ of I_{nom} @ 5 kHz

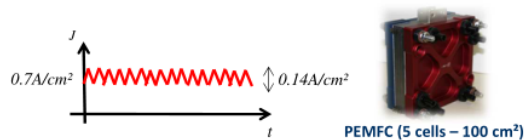


图 2.3 FC2 测试工况

Fig.2.3 FC2 testing conditions

在在测试过程中测量了 25 组不同的监测数据，其中，FC1 的电堆电压、氢气入口温度、空气湿度的变化趋势如图 2.4 所示。

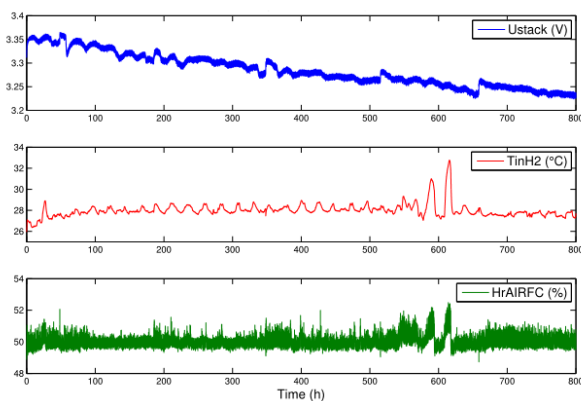


图 2.4 FC1 部分测试数据

Fig.2.4 FC1 test data

FC2 的电堆电压、氢气压差及空气压差的变化趋势如图 2.5 所示。

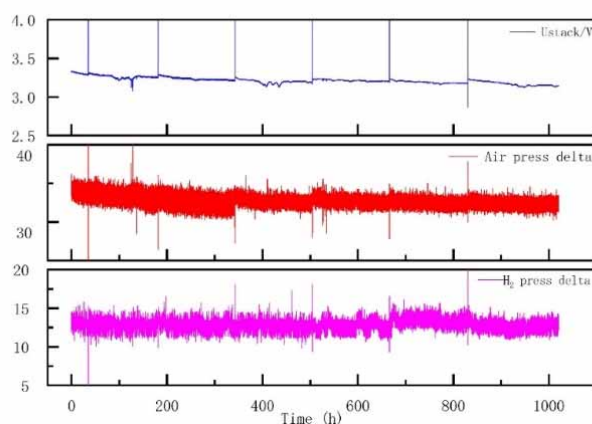


图 2.5 FC2 部分测试数据

Fig.2.5 FC2 test data

本文选择 FC2 的测试数据作为寿命预测的数据集，因为 FC2 的测试工况中电流的波动更大，燃料电池的电压波动及衰减也更强烈，作为预测数据集更具有代表性和挑战性。FC2 数据集的测试时间也较长，可以充分验证预测模型的性能。

2.2.2 水管理故障数据集

为了复现燃料电池车辆可能出现的故障，本文在燃料电池系统上运行预设的工况来模拟实车的水管理故障条件，基于 2.1.2 的机理分析，在本文中水淹、膜干主要通过改变温度、入堆气体湿度、气体流量、气体流阻等来模拟水管理故障。

试验运行工况如图 2.6 所示。设计不同的操作条件来实现不同的湿度、不同的温度、不同的计量比、不同的压力等组合，这些组合反应了不同程度的燃料电池水管理故障状态。每种条件稳定运行 10-30min 的时间，通过 CAN 通讯采集数据。

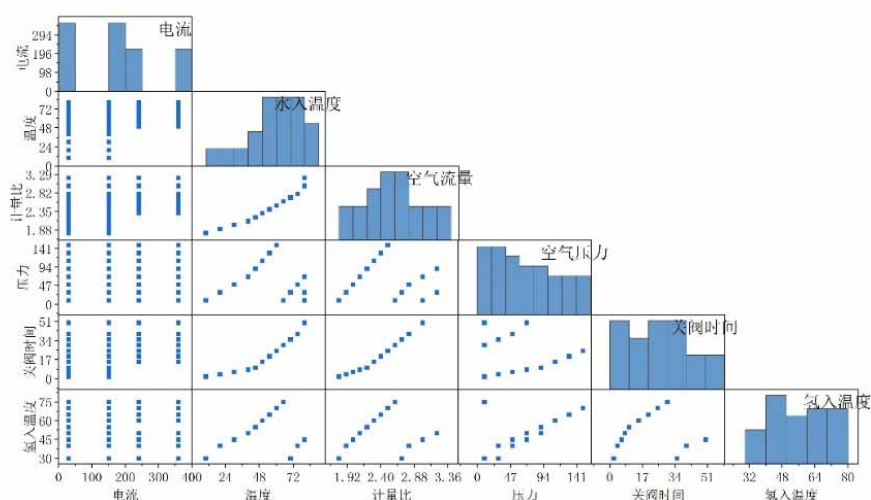


图 2.6 测试工况

Fig.2. 6 Test conditions

测试工况的采集数据中一些参数（高频阻抗、氢循环泵电流、空气流量）的变化趋势如图 2.7 所示。可以看到随着时间的累积，以及条件的变化，很多参数呈现了一定的规律性。

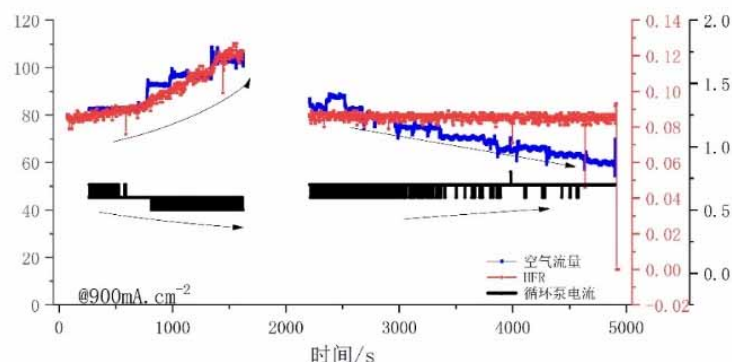


图 2.7 采集参数

Fig.2.7 Acquisition parameters

为了确定燃料电池真实的内部水管理故障状态，外接一个阻抗仪测试燃料电池的固定频率的阻抗，通过奈奎斯特图与 x 轴的交点得到传质阻抗 R_m 、欧姆阻抗 R_s ，阻抗仪与燃料电池系统的连接方式如图 2.8 所示。阻抗的测试结果如图 2.9 所示。根据实验结果设置单节 R_m 大于 $1m\Omega$ ，燃料电池的传质阻抗偏大，燃料电池可能存在水淹状态，单节 R_s 大于 $0.3m\Omega$ ，燃料电池的欧姆阻抗偏大，燃料电池可能存在膜干状态。根据阻抗测试结果对数据样本进行标注。

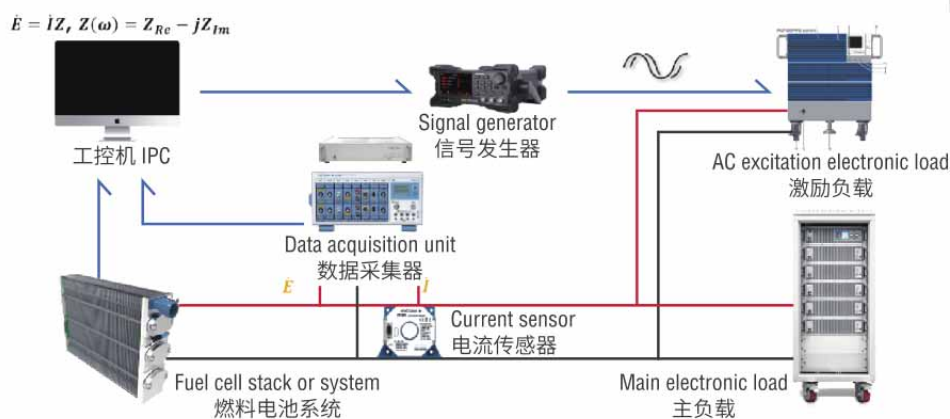


图 2.8 阻抗仪连接方式

Fig.2.8 Connection mode of impedance meter

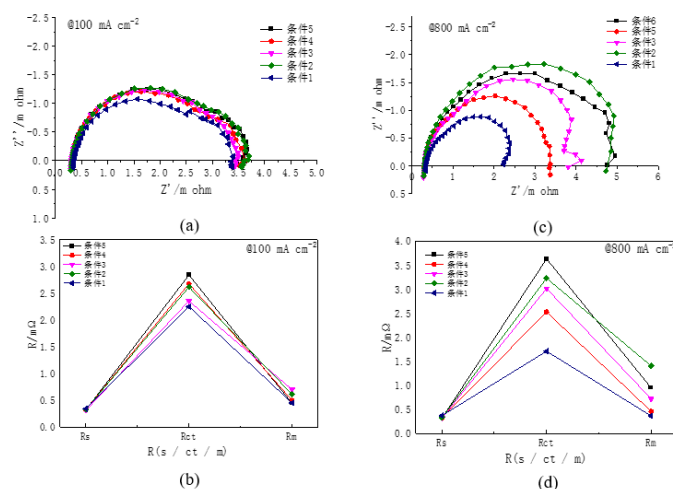


图 2.9 阻抗测试结果

Fig.2.9 Impedance test results

将燃料电池故障模拟数据集的格式定义为[time, data1, data2, ..., datam, label], 其中, data 为燃料电池运行状态的采集数据; label 为根据阻抗仪人工标注的 data 所属状态类别。Label 值为 0 表示燃料电池为正常状态, 值为 2 表示燃料电池存在水淹状态、值为 1 表示燃料电池为膜干状态。由于燃料电池氧化剂缺乏状态与空气流量线性相关, 容易诊断, 所以不列入故障诊断数据集。

2.3 长短期记忆神经网络

预测不同运行时间下的燃料电池寿命或者故障状态可以等效为为时间序列预测任务, 可以通过深度学习方法进行。在各种类型的深度学习模型中, 循环神经网络(RNN)非常适合于学习并预测时间序列数据, 可以实现在燃料电池寿命或故障预测中的应用。在实际的工作中也证明了它的有效性。然而, RNN 处理长期预测会出现梯度爆炸和梯度消失问题^[65]。针对该现象, RNN 的变体-长短期记忆网络 (Long Short-Term Memory Network, LSTM) 能够有效地解决梯度爆炸或消失问题^[66]。

LSTM 网络在 RNN 的正常信息流增加了门控单元存储信息, 可以选择性的存储长期数据的内在信息并捕捉时间序列数据之间的长时间尺度相关性。通过门的开关判定是否删除或者添加信息。门依据控制信号利用自身的权重集合处理信息并决定是否允许信息通过。而权重值会通过 LSTM 网络的学习过程进行调整。

LSTM 网络使用内部状态 c_t 、 h_t 进行线性的循环信息传递。内部状态 c_t 、 h_t 通过公式 (2.1)、(2.2) 进行计算:

$$\mathbf{c}_t = \mathbf{f}_t \odot \mathbf{c}_{t-1} + \mathbf{i}_t \odot \hat{\mathbf{c}}_t \quad (2.1)$$

$$\mathbf{h}_t = \mathbf{o}_t \odot \tanh(\mathbf{c}_t) \quad (2.2)$$

式中 \mathbf{f}_t , \mathbf{i}_t , \mathbf{o}_t 代表控制信息传递的路径的三个门, 依次是遗忘门、输入门、输出门。

候选状态 $\hat{\mathbf{c}}_t$ 的计算公式如 (2.3) 所示:

$$\hat{\mathbf{c}}_t = \tanh(\mathbf{W}_c \mathbf{x}_t + \mathbf{U}_c \mathbf{h}_{t-1} + \mathbf{b}_c) \quad (2.3)$$

LSTM 网络中的三个门的作用为:

(1) 遗忘门 \mathbf{f}_t 用于更新长期记忆状态, 控制内部状态 \mathbf{c}_{t-1} 遗忘信息来过滤长期记忆中遗留的重要信息。

(2) 输入门 \mathbf{i}_t 用于计算候选状态结构, 控制候选状态 $\hat{\mathbf{c}}_t$ 的保存信息量确定哪些信息用来更新长期记忆状态。

(3) 输出门 \mathbf{o}_t 用于计算短期记忆状态的结构, 总结前几个阶段的工作并确定下一阶段的输出信息。

三个门的计算公式如下所示:

$$\mathbf{i}_t = \sigma(\mathbf{W}_i \mathbf{x}_t + \mathbf{U}_i \mathbf{h}_{t-1} + \mathbf{b}_i) \quad (2.4)$$

$$\mathbf{f}_t = \sigma(\mathbf{W}_f \mathbf{x}_t + \mathbf{U}_f \mathbf{h}_{t-1} + \mathbf{b}_f) \quad (2.5)$$

$$\mathbf{o}_t = \sigma(\mathbf{W}_o \mathbf{x}_t + \mathbf{U}_o \mathbf{h}_{t-1} + \mathbf{b}_o) \quad (2.6)$$

公式(2.1)~公式 (2.6)可以简洁地描述为公式 (2.7), LSTM 单元结构在图 2.10 中展示。

$$\begin{bmatrix} \hat{\mathbf{c}}_t \\ \mathbf{o}_t \\ \mathbf{i}_t \\ \mathbf{f}_t \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tanh \\ \sigma \\ \sigma \\ \sigma \end{bmatrix} (\mathbf{W} \begin{bmatrix} \mathbf{x}_t \\ \mathbf{h}_{t-1} \end{bmatrix} + \mathbf{b}) \quad (2.7)$$

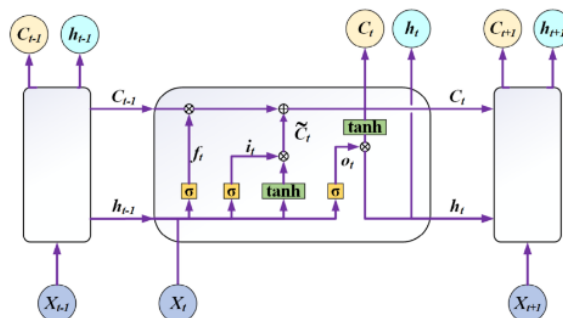


图 2.10 LSTM 神经网络模型

Fig.2.10 LSTM network

2.4 注意力机制

深度学习中的注意力机制借鉴了人类的视网膜敏锐性集中机制也就是视觉集中机制，核心目标是在计算能力有限的情况下，从众多信息中选出对当前任务目标更重要的信息，以解决信息超载遗失的问题。常用的 LSTM 神经网络理论上可以提取长距离的特征信息，但在实际训练过程中由于信息传递的容量问题，仍会出现信息遗失超载、遗失的问题。如果想要提取并保存长距离的特征信息，除了增加 LSTM 网络的层数来提取远距离的信息外，另一种方法就是直接建立全连接层实现长距离的特征直接传输，但是全连接层有着更大的弊端，无法处理变化的输入长度。不同的输入长度，连接权重的大小也是不同的。针对这个问题，提出了增加注意力机制的方法，增加注意力机制的模型可以针对性地生成不同的连接权重^[67]。图 2.11 展示了注意力机制的示例。其中，2.11(a)展示了软注意力模式，2.11(b)展示了硬注意力模式。软注意力机制的权重分布范围是 $[0, 1]$ ，硬注意力机制的权重是 0 或 1。

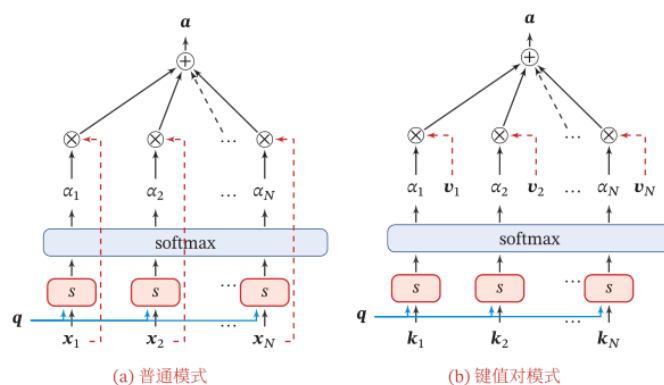


图 2.11 注意力机制模型

Fig.2.11 Attention mechanism model

2.5 超参数优化

为了提高神经网络的性能和预测效果，在神经网络的训练过程中，需要对超参数进行优化。对于 LSTM 神经网络来说，需要优化的超参数包括滑动窗口大小、隐藏层层数、隐藏层神经元数、丢弃系数等众多参数。如果通过人工经验设置这些参数，对于不同的数据背景，人工确定的超参数并不一定是最优的。同时，采用人工试错方法确定超参数费时又费力。所以，研究者们提出了通过机器学习算法来优化神经网络中的超参数。常用的超参数优化方法在 2.5.1-2.5.5 中描述。

2.5.1 网格搜索

网格搜索（Grid Search）通过尝试所有超参数的搭配组合来确定最佳的超参数搭配。但是该方法用于优化多个超参数及大规模数据集时非常耗时，因此只有超参数较少时才会使用该方法。

2.5.2 随机搜索

不同超参数对模型性能的影响有很大差异。当要搜索的超参数个数较多的时候，采用网格搜索会在不重要的超参数上浪费大量的时间，有学者提出了随机搜索（Random Search）^[68]，随机搜索采用随机组合超参数，从中选取一定数量，最后从中选取一个性能最好的配置。相比网格搜索，随机搜索在神经网络中更容易实现，也更加有效。

2.5.3 动态资源分配

在超参数优化中，每组超参数配置的评估时长较长。如果设置在较早的阶段就中止效果比较差的配置，那么就可以将更多的资源留给其他配置。神经网络的优化过程中可以通过一组超参数的随机梯度下降曲线来预估这组超参数配置的学习效果。如果这组超参数配置的梯度下降曲线收敛性较差，可以应用提前停止（Early-Stopping）策略来中止当前的训练，这就是最简单的动态资源分配方法。

2.5.4 贝叶斯优化

贝叶斯优化^[69]是一种自适应的超参数优化方法，根据已经完成测试的超参数搭配，来预测下一个效果可能更佳的组合。贝叶斯优化方法由两个主要部分组成：用于对目标函数进行建模的贝叶斯统计模型，以及用于决定下一步在何处采样的采集函数。根

据初始空间填充实验设计通常由随机均匀选择的点组成的评估目标，它们被迭代地用于分配 N 个函数评估预算的剩余部分，从而快速找到使得全局最优的超参数。

2.5.5 进化算法

在超参数优化过程常使用的进化算法主要有遗传算法和粒子群优化算法。

遗传算法是使该算法可靠并能够估计给定问题的全局最优解的是在每一代中保持最优解并使用它们来改进其他解的过程。因此，整个种群一代又一代地变得更好。个体之间的交叉导致了对给定的两个父系解决方案之间的“区域”的利用。该算法还受益于变异，算子随机改变染色体中的基因，保持了种群中个体的多样性，增加了遗传算法的探索行为^[70]。

粒子群优化算法的灵感来源于社会动物的集体行为。在粒子群优化算法（PSO）中，优化问题的候选解集被定义为一群可以流经参数(搜索)空间的粒子，这些粒子定义了由自己和邻居的最佳性能驱动的轨迹。事实上，与其他受自然启发的算法不同，进化是基于个体之间通过世代(迭代)的合作和竞争：粒子之间的信息流，可以限制在局部邻域(局部 PSO)，也可以扩展到整个种群(全局 PSO)，这是该算法的一个基本特征^[71]。

2.6 本章小结

本章中，首先介绍了燃料电池系统的一些常见的故障，分析了故障发生的原因、导致的后果等，对燃料电池电堆的衰减及失效机理进行了总结；其次介绍了通过故障模拟实验得到的故障数据集以及 FCLAB 公开的寿命数据集。最后介绍了燃料电池故障诊断和寿命预测中常用的神经网络模型基本概念和原理，以及用于神经网络模型优化的超参数优化方法，为后续章节提供了理论基础。

第三章 燃料电池剩余使用寿命离线预测方法

本章研究了 LSTM 神经网络在燃料电池剩余使用寿命离线预测上的应用。燃料电池寿命预测对于燃料电池的商品化过程有着重要的意义，准确、快速的预测方法能够在燃料电池的生命周期中指导燃料电池的选型、控制方法的调整以及运行策略的优化。燃料电池寿命预测是高度非线性预测问题，其输入输出可看作是一种特殊的映射关系，是和时间序列相关的预测问题，由于预测过程包含多变量和大规模数据，从理论来说，通过 LSTM 神经网络预测电池寿命效果是比较好的。基于上述原因，本章首先设计了一种基于堆叠式 LSTM 神经网络的燃料电池寿命离线预测方法，能够自动提取并识别老化特征预测燃料电池的剩余使用寿命。然后使用 FClab 测试的寿命数据集进行实验，验证该方法对于燃料电池离线寿命数据能否准确高效的进行拟合并预测。最后，分别采用三种不同训练集和测试集的配置方式验证寿命预测方法的有效性。并与深度学习模型中常用的 BP 神经网络、卷积神经网络进行对比，进一步验证了提出的预测方法对于燃料电池寿命预测效果的优越性。

3.1 神经网络模型建立过程概述

对于神经网络来说，不管是卷积神经网络，还是循环神经网络，其网络模型创建的流程都可以总结为下面几步，如图 3.1 所示。本文中的神经网络模型基于该流程搭建，依次进行数据预处理、神经网络模型搭建及训练、评价函数评价，超参数的调优。

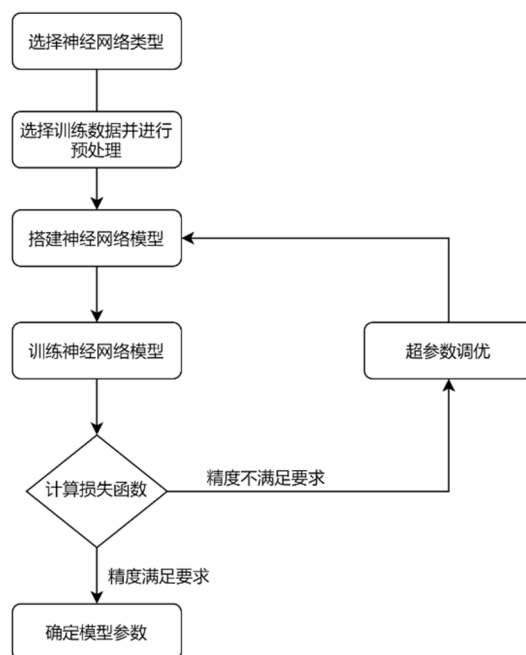


图 3.1 神经网络模型训练流程

Fig.3.1 The process of neural network model creation

3.2 数据集预处理

3.2.1 模型的输入、输出参数选择

本文选用 FClab 实验室采集的 FC2 燃料电池原始数据包括电堆电压、电流、温度、湿度、压力、单电压等在内的 25 组特征数据。对燃料电池的参数与时间进行矩阵绘制并结合 2.1.1 寿命衰减的理论分析,可以得知在燃料电池的众多老化表征参数中,燃料电池的电堆电压是较明显的燃料电池性能退化的外在表征,所以选择电压作为模型的输出。模型的输入参数应选择对于燃料电池衰减产生影响的特征数据,从 2.1.1 寿命衰减机理分析可知,燃料电池的严苛运行工况会加速寿命衰减,而采集的电压、电流、温度、流量、压力、湿度特征数据能够综合的表征运行工况,因此选择包括电堆电压、电流、温度、流量、压力、湿度在内的全部特征数据。

3.2.2 数据预处理

本文选用的 FC2 燃料电池原始数据数据量较大,且原始数据含有噪声和尖峰,如图 2.5 中所示,在 100h, 400h, 830h 等时间点存在突变的电压值,这些电压值的偏差会使计算结果产生较大误差。针对该现象,需要对原始数据进行重构,本文采用数据重构、局部加权回归平滑法(LOESS)、数值归一化处理原始数据。

由于较短时间间隔的电压波动较小，对模型的影响低，但会增加计算的时间长，因此对全部数据进行数据筛选，筛选方式为每小时等间隔采样 2 次，每次时间 1s。

局部回归模型通常由加权线性最小二乘模型和二阶多项式模型组成。通过设置滤波器的窗口宽度，可以有效地对含有噪声和大量尖峰的原始信号进行滤波平滑，且反映原始数据的总体规律，更好地过滤了噪声和尖峰。待平滑的数据由 x 和 y 标识，通过指定与 x 相邻的数据范围的加权回归来获得 (x,y) 的平滑值。其中，回归系数、斜率 a 和常数 b 的计算公式如下所示：#

$$w_i = \begin{cases} \left(1 - \left|\frac{x-x_i}{d(x)}\right|\right)^3, & \left|\frac{x-x_i}{d(x)}\right| \leq 1 \\ 0, & \left|\frac{x-x_i}{d(x)}\right| \geq 1 \end{cases} \quad (3.1)$$

$$a = \frac{\sum w_i^2 (x-\bar{x})(y-\bar{y})}{\sum w_i^2 (x-\bar{x})^2} \quad (3.2)$$

$$B = \bar{y} - a\bar{x} \quad (3.3)$$

经过局部加权回归平滑法处理后的输出变量-电堆电压数据如图 3.2 所示。

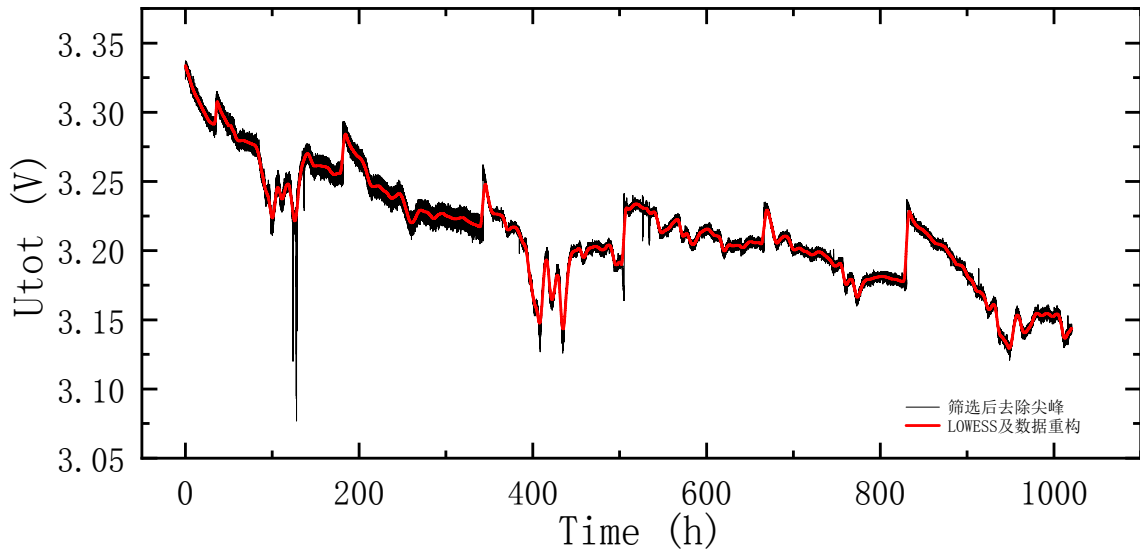


图 3.2 处理前后的电压曲线对比

Fig.3. 2 Comparison of voltage curves before and after treatment

对于其他变量也采用同样方法进行预处理，部分变量预处理后数据如图 3.3 所示。

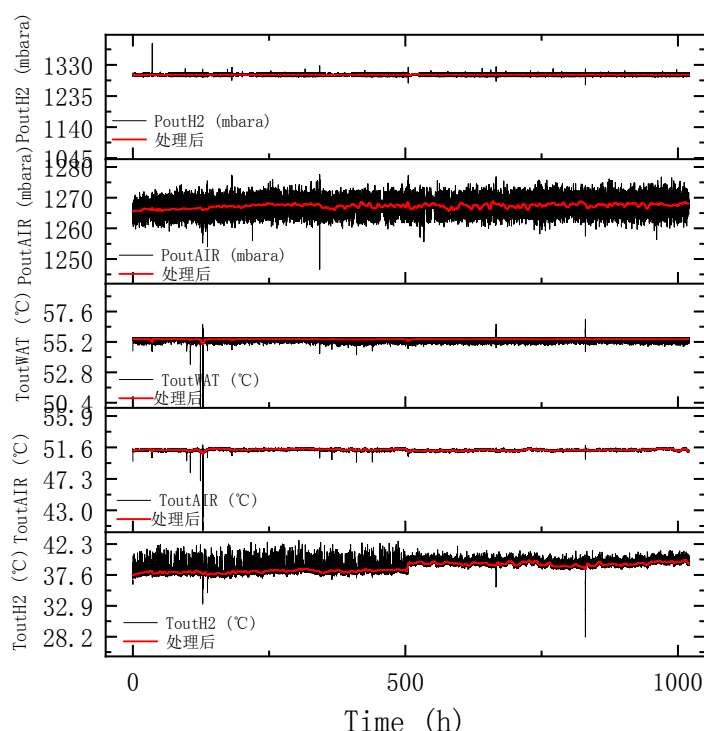


图 3.3 处理前后的传感器参数曲线对比

Fig.3.3 Comparison of Sensor parameter curves before and after treatment

由于各个变量的范围差异较大，所以本文处理后的数据还需要进行归一化处理。常用的归一化方法有最小最大值归一化、Z 值归一化，本节选择最小最大值归一化，通过缩放将每一个特征的取值范围归一到 $[0, 1]$ 之间。假设有 n 个样本 $\{x^{(n)}\}_0^1=1$ ，对于每一维特征 x ，归一化后的特征为：

$$\hat{x}^{(n)} = \frac{x^{(n)} - \min_n(x^{(n)})}{\max_n(x^{(n)}) - \min_n(x^{(n)})} \quad (3.4)$$

由于对输入数据进行了归一化处理，在得到预测结果后还要进行反归一化处理，反归一化计算公式 (3.5) 如下所示：

$$x = \frac{\hat{x} (x_{\max} - x_{\min}) + (x_{\max} + x_{\min})}{2} \quad (3.5)$$

3.2.3 输入样本构造

为了满足 LSTM 模型输入要求，需要对 LSTM 模型的训练数据集中的多维序列进行时间窗滑动，构造 LSTM 模型的输入样本，采用滑动时间窗构造样本，构造后的样

本形式为 LSTM 模型输入形式为 (batch_size, Window_size, feature_size), 其中 batch_size 代表模型训练过程中每一批次输入的样本个数, Window_size 代表时间步长, feature_size 是特征维度。

时间步长代表着模型通过前置时间步长内的数据来预测下一步的趋势, 为了更贴近真实应用场景, 本文将时间步长统一设置为 10s。

3.2.4 数据集划分

为实现同类文献的预测结果对比和本文各模型之间的对比测试, 根据燃料电池寿命实验测试的时长和预设的寿命终点, 本文选择设置全部数据的前 50% 为训练集作为基础实验, 相当于通过运行 500h 燃料电池寿命实验来预测寿命终点。

FClab 测试过程还周期性的进行了燃料电池的启停操作, 这使得燃料电池性能有了短暂的恢复。恢复效应的发生会对预测造成偏差, 因此数据集的划分应考虑不同的训练起点和预测起点以验证模型的泛化能力。

考虑长期寿命预测和短期寿命预测的差异, 本文在设置 50% 的数据为训练集来评价模型的预测能力的基础上。为了明确长期预测和短期预测对于预测结果的影响, 本文选择将 30% 的数据和 70% 的数据分别作为训练数据以考察模型的长期预测能力和短期预测能力。

对于寿命终点的选择, 美国能源部规定初始性能的 90% 作为寿命的终点, 由于本文选择的寿命数据集时间较短, 运行结束时燃料电池尚未衰减至 90%, 设置寿命终点为初始性能的 95%。那么该燃料电池的实际使用寿命为 917h。

3.3 基于 LSTM 神经网络的剩余使用寿命预测方法

3.3.1 激活函数及评价函数选择

本文选择常用的激活函数进行人工调参或者机器学习算法调参, 最终选择效果最好的激活函数作为模型的激活函数, 常用的 5 种激活函数公式如表 3.1 所示, 各个激活函数图像如图 3.3 所示。从图中可以看出, 当输入特别小或者特别大的时候, Logistic 函数和 Tanh 函数容易导致梯度爆炸。

表 3.1 常用的激活函数

Table3.1 Activation function

激活函数	函数公式	导数公式
Logistic 函数	$f(x) = \frac{1}{1+\exp(-x)}$	$f'(x) = f(x)(1-f(x))$
Tanh 函数	$f(x) = \frac{\exp(x)-\exp(-x)}{\exp(x)+\exp(-x)}$	$f'(x) = 1-f(x)^2$
ReLU 函数 ^[72]	$f(x) = \max(0, x)$	$f'(x) = I(x > 0)$
ELU 函数	$f(x) = \max(0, x) + \min(0, \gamma(\exp(x) - 1))$	$f'(x) = I(x > 0) + I(x \leq 0) \cdot \gamma \exp(x)$
SoftPlus 函数	$f(x) = \log(1 + \exp(x))$	$f'(x) = \frac{1}{1 + \exp(-x)}$

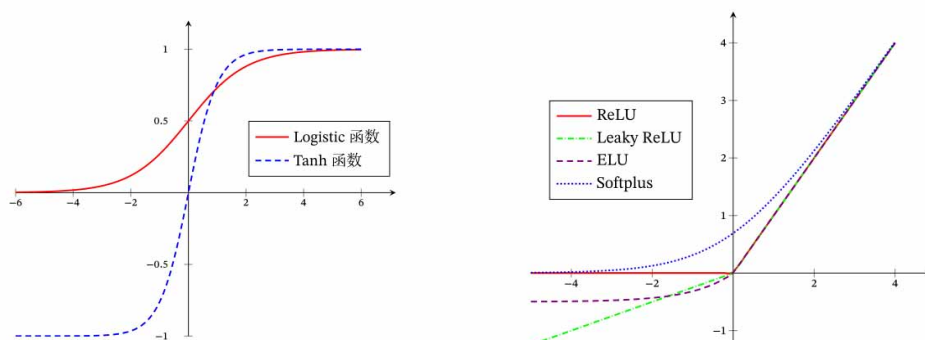


图 3.4 常见的激活函数

Fig.3.4 Common activation functions

本章设定了三个评价指标来评价模型的精度，分别是均方根误差、平均绝对误差、决定系数，第四章评价改进后的 LSTM 网络同样引用这些评价指标。数学公式如下所示：

均方根误差（Root Mean SquareError, RMSE）一般用于预测误差不是很明显的时候，计算公式如（3.6）所示。

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{m} \sum_{i=1}^m (x_i - \hat{x}_i)^2} \quad (3.6)$$

平均绝对误差 (Mean Absolute Error, MAE), 适用于预测值和实际观测值误差较为明显的情况, 对于大的误差其 MAE 也相对较大, 计算公式如 (3.7) 所示。

$$\text{MAE} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m |x_i - \hat{x}_i| \quad (3.7)$$

决定系数 (Coefficient of Determination, R^2) 是一个综合评价指标, 越接近于 1, 表示相关程度越高, 拟合程度越高。

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^m (\hat{x}_i - x_i)^2}{\sum_{i=1}^m (\bar{x}_i - x_i)^2} \quad (3.8)$$

3.3.2 训练算法选择

模型训练方法可以归纳为两种类型, 一种通过调整学习率, 使得优化更稳定; 另一种采用梯度估计修正方法来优化训练速度。Adam 算法^[73]结合了两种方法的优点, 使用动量作为参数更新方向, 而且可以自适应调整学习率。

Adam 算法一方面计算梯度平方的指数加权平均, 另一方面计算梯度 g_i 的指数加权平均。计算公式如下:

$$M_i = \beta_1 M_{i-1} + (1 - \beta_1) g_i \quad (3.9)$$

$$G_i = \beta_2 G_{i-1} + (1 - \beta_2) g_i \odot g_i \quad (3.10)$$

其中 β_1 和 β_2 是两个移动平均的衰减率, 通常取值为 $\beta_1 = 0.9$, $\beta_2 = 0.99$ 。学习率 α 通常设为 0.001, 也可以进行衰减动态更新, 比如 $\alpha_i = \alpha_0 / t$ 。

3.3.3 正则化

训练深度神经网络时, 为了避免过拟合, 可以随机丢弃一部分神经元, 这种方法称为弃权法^[74]。每次选择丢弃的神经元是随机的。需要注意的是, 在 LSTM 神经网络上应用丢弃法时, 不能直接对每个时刻的隐藏状态进行随机丢弃, 因为会影响 LSTM 神经网络在时间维度上的记忆能力。每次采样的参数应在每个时刻保持不变。图 3.4 给出了变分丢弃法的示例。

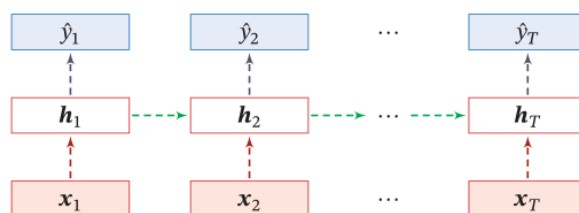


图 3.4 LSTM 网络丢弃模型

Fig.3. 4 Dropout Method of LSTM network

3.3.4 开发环境

本文的 LSTM 预测模型使用 Python 编程工具开发，调用 TensorFlow 深度学习平台。TensorFlow 被广泛应用于各类机器学习算法的编程实现。具有易用性、灵活性、高效性的特点，其工作流易于理解，API 也具有高度的一致性。能够运行在不同类型和尺寸的机器之上，这无论是在计算机上，还是在嵌入式系统，都能够发挥用处。并且 Tensorflow 具有分布式架构，可利用 CPU 和 GPU 同时加速，能够使大规模数据集上的模型训练在合理的时间内完成。因此被广泛应用于模型开发和各领域的科学研究。2015 年起，TensorFlow 开始开放源代码。

计算机配置为 Intel CORE i7-9700K、GeForce RTX 2080、DDR4 3000 32GB 内存。

3.3.5 LSTM 模型参数

3.3.1-3.3.3 介绍了模型结构中的重要参数，3.3.4 介绍了开发模型的计算机工具。作为总结，本节描述了完整的 LSTM 模型结构。图 3.5 描述了本章基于堆叠式 LSTM 的燃料电池寿命预测模型，本章提出了一个通过 Adam 算法优化的堆叠式 LSTM 预测模型，该预测模型包括三层堆叠的 LSTM 层，堆叠 LSTM 能够自主分析隐藏在时序数据中的因果影响关系，从输入参数中充分挖掘出有价值的寿命衰减信息，准确地建立相应的剩余寿命预测模型。并且堆叠 LSTM 网络能够有效的避免梯度消失问题。除此外，对于可能带来的过拟合问题，本文采取 L2 正则化技术防止过拟合，并在每层 LSTM 网络后增加一层 Dropout 层，Dropout 层丢弃系数设置为 0.02。对于优化算法的选择，采用 Adam 算法对 LSTM 模型进行训练，Adam 参数的学习率按照经验设置为 0.001，表 3.2 中详细总结了根据经验设置的 LSTM 模型参数。

表 3.2 LSTM 模型参数

Table3. 2 LSTM model parameters

参数名称	参数值	参数名称	参数值
------	-----	------	-----

激活函数	Tanh	正则化方法	L2
损失函数	MSE	丢弃层比例	0.1
优化算法	Adam	批大小	64
堆叠层数	3	迭代次数	100
隐藏层神经元数	64	时间步长	10

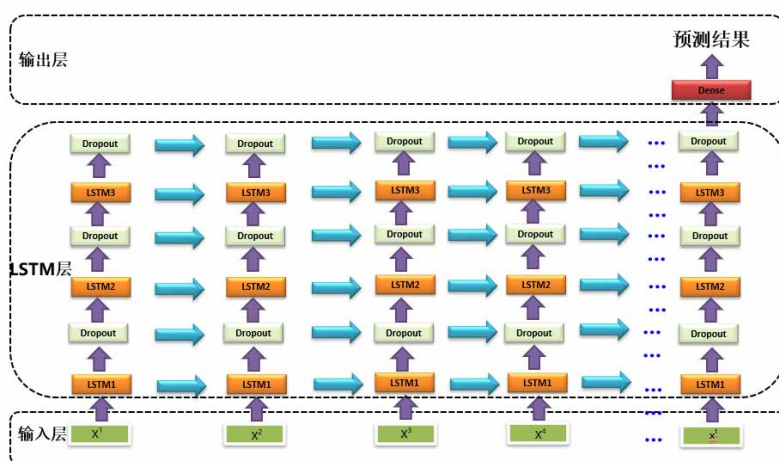


图 3.5 LSTM 网络预测模型

Fig.3.5 Predict Module of LSTM network

3.4 实验结果

3.4.1 预测结果分析

使用训练数据占比 50%的数据集进行训练并验证，预测的效果如图 3.6、图 3.7 所示，可以看出使用 LSTM 模型预测效果较好，预测电压曲线与实际电压曲线做到了很好的拟合，预测的精度较高，MAE 和 RMSE 均低于 0.02， R^2 高于 0.98。根据该预测结果估计燃料电池的寿命为 913.5h，剩余寿命为 398h，与实际剩余寿命偏差 3.5h。这说明该模型能够通过 500h 的燃料电池运行数据实现 1000h 内的寿命终点的预测，对于燃料电池寿命衰减特征做到了充分的提取。

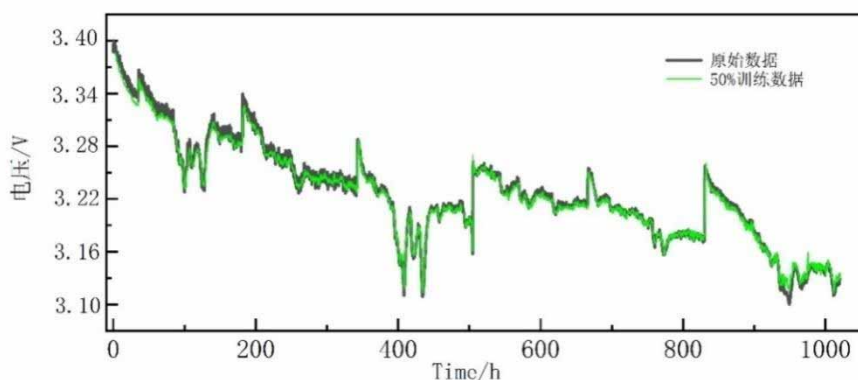


图 3.6 LSTM 模型预测结果-电压趋势

Fig.3.6 Predict Results of LSTM model- Voltage variation trend

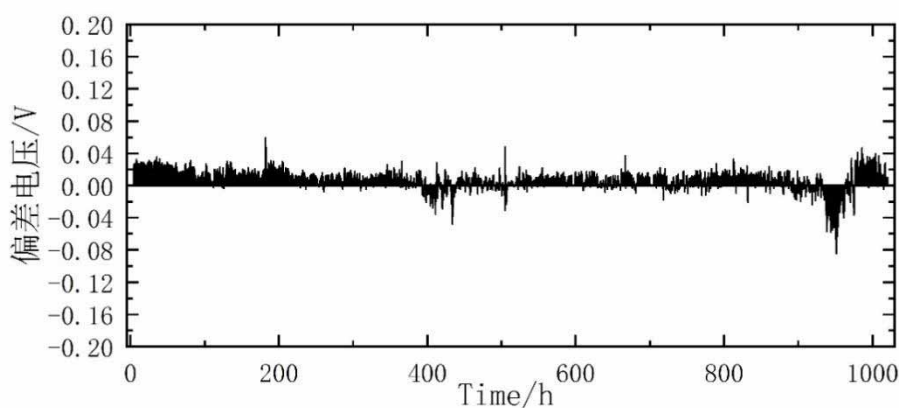


图 3.7 LSTM 模型预测结果-电压偏差趋势

Fig.3.7 Predict Results of LSTM model- Loss function trend

3.4.2 模型性能分析

为了验证 LSTM 寿命预测模型的泛化性,结合燃料电池的性能恢复现象,将数据集划分为 0-600h、200-800h、400-1000h 三段数据集,分别将每段数据集的前 50%作为训练集,预测效果如图 3.8 所示,预测精度见表 3.3。从结果可以看出对于每一段数据, LSTM 模型都能够进行很好的预测,并且保持着较高的预测精度。

为了验证 LSTM 寿命预测模型对于长期、短期的寿命预测能力。使用该模型训练不同长度的寿命数据,分别预测按照 3.2.4 规定划分的不同长度的训练数据,预测精度如表 3.3 所示。预测效果如图 3.9 所示。从预测结果可以看出当训练数据变少且过多受性能恢复效应的影响时, LSTM 寿命预测模型的精度有所下降,拟合曲线也和实际的

寿命衰减趋势有所偏离,当用来预测的数据仅有 300h 时,按照初始性能 95%的寿命终点进行寿命预测,预测的寿命时间偏差 15h,这对于实际应用来说偏差较大,说明模型的短期寿命预测能力较好,但综合预测能力仍需要进一步的提高。

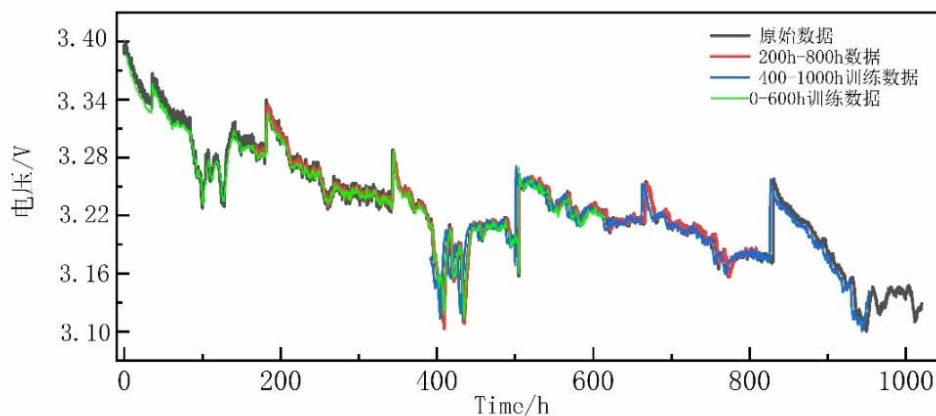


图 3.8LSTM 模型预测结果-电压趋势

Fig.3.8 Predict Results of LSTM model- Voltage variation trend

表 3.3 不同数据长度的模型预测精度

Table3. 3 Model prediction accuracy of different data lengths

数据集长度	RMSE	MAE	R^2
0-600h (50%训练数据)	0.014	0.012	0.988
200-800h (50%训练数据)	0.016	0.015	0.986
400-1000h (50%训练数据)	0.026	0.021	0.981

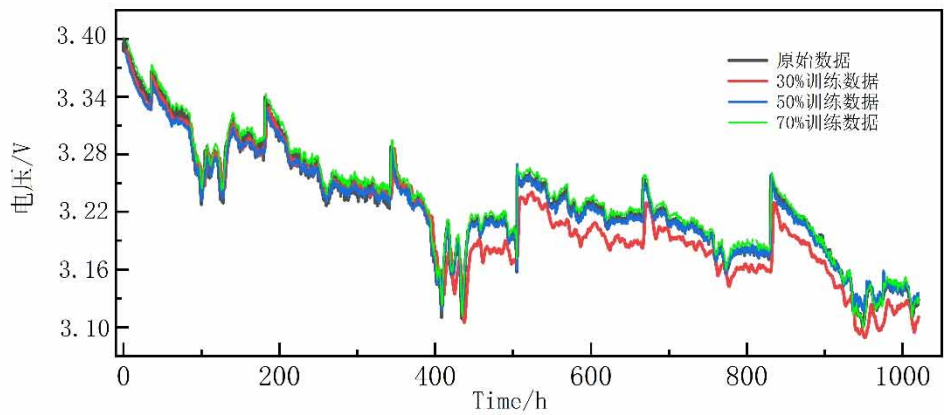


图 3.9 LSTM 模型预测结果-电压趋势

Fig.3.9 Predict Results of LSTM model- Voltage variation trend

表 3.4 不同预测起点 LSTM 模型预测精度

Table3. 4 LSTM model prediction accuracy with different prediction starting point

预测起点	RMSE	MAE	R ²
50%训练数据	0.014	0.011	0.983
30%训练数据	0.076	0.073	0.92
70%训练数据	0.007	0.006	0.99

3. 4. 3 对照组实验

为了验证 LSTM 寿命预测模型在神经网络模型中对燃料电池寿命预测的有效性，分别采用常用的神经网络模型：反向传播（BP）神经网络和卷积神经网络作为对照组，对相同步骤预处理后的数据集进行预测，比较预测结果的精度和效果。BP 神经网络模型参数按照经验设置如下：隐藏层数为3，隐藏层神经元为 64-32-16，优化器为 ADAM，学习率为0.001，激活函数选择为relu函数。卷积神经网络参数如下：卷积核大小为 5*1、卷积核数量设置为 16、卷积核滑动的步长为 1、激活函数选择为 relu 函数。

数据集的设置与 3.4.2 保持一致，设置了三个预测起点，训练集长度分别为 300h、500h、700h。预测结果如下所示：三个训练模型的预测精度在表 3.4 中列出。三个模型的电压预测效果在图 3.10 进行对比，为了对比清晰，图中仅展示了每个模型对于 30% 训练数据的电压预测效果。从全部预测结果可以看出，堆叠 LSTM 模型的预测效果要优于另外两个模型，BP 神经网络的效果最差，说明 BP 网络无法从数据中挖掘出深层

次的联系。卷积神经网络受训练数据长度的影响较大。这说明堆叠 LSTM 模型对于时序数据的预测效果更好，能够挖掘出隐藏在时间中的特征变量之间的联系。

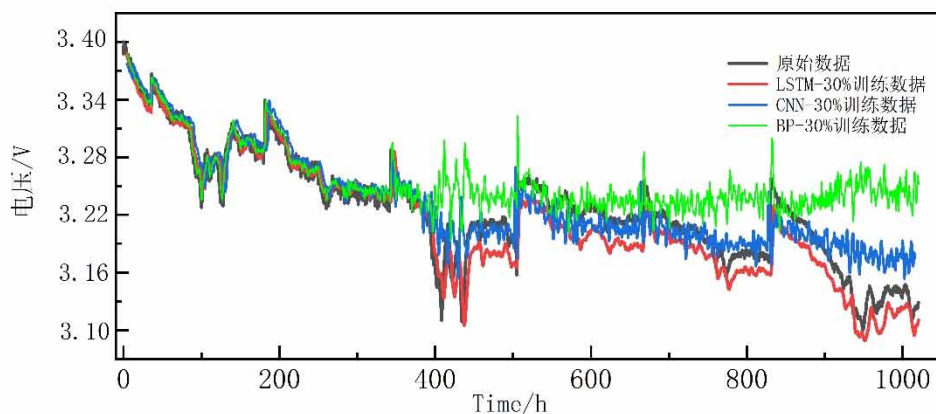


图 3.10 LSTM 模型预测结果-电压趋势

Fig.3.10 Predict Results of LSTM model- Voltage variation trend

表 3.5 LSTM 预测模型精度

Table3. 5 LSTM model parameters

模型类型	预测起点	RMSE	MAE	R ²
LSTM	50%训练数据	0.014	0.011	0.983
	30%训练数据	0.056	0.053	0.92
	70%训练数据	0.007	0.006	0.99
CNN	50%训练数据	0.029	0.027	0.971
	30%训练数据	0.088	0.079	0.90
	70%训练数据	0.021	0.019	0.982
BP	50%训练数据	0.043	0.041	0.933
	30%训练数据	0.114	0.099	0.834
	70%训练数据	0.031	0.028	0.960

3.5 本章小结

基于 LSTM 神经网络在时序数据预测方向的优势，本章设计了一种基于堆叠式 LSTM 神经网络的燃料电池寿命预测方法，具体的预测过程包括以下主要步骤：

1. 搭建燃料电池测试系统，建立燃料电池寿命离线数据库。
2. 确定预测模型神经网络的输入参数、输出参数。
3. 对离线数据进行预处理，首先对数据进行提取，以 2 次/h 的频率等间距的从数据库提取数据。然后采用局部加权回归平滑法(LOESS)对试验数据进行处理，以降低数据噪声。对平滑后的数据进行归一化处理，使数据的所有变量都落在一个共同的取值范围内。
4. 将处理后的数据集划分为训练集和测试集。
5. 建立基于堆叠式 LSTM 神经网络的燃料电池寿命预测模型，对于神经网络中的参数进行了设置。
6. 使用划分好的训练数据集送入建立好的模型进行训练，使用划分好的测试数据集送入模型进行寿命预测。

将预测结果进行对比以分析模型的有效性和泛化性。实验的结果表明，基于较长时间训练集的燃料电池寿命预测，上述 LSTM 神经网络可以做到较好的预测，预测精度、拟合效果都较高。并且与其他的预测模型进行对比，预测效果要好于其他几个常用预测模型。当训练集长度发生改变，燃料电池的寿命预测从短期预测变为长期预测时，模型的预测精度会有一定的降低。所以在下一章，会针对模型的长期预测能力弱这一特点，改进本章的寿命预测模型，进一步提高预测精度和效果，改良模型性能。

第四章 改进的燃料电池剩余使用寿命离线预测方法

第三章设计了一种燃料电池剩余使用寿命预测的方法,针对燃料电池寿命数据时序性、关联性大的特点,提出了一种基于堆叠 LSTM 神经网络的寿命预测模型。结果证明短期寿命的预测效果较好,但预测长期寿命时模型性能会变差,尤其是用少量的数据预测长期的寿命时,预测精度较低,一些超参数也需要重新调整,这说明预测模型的鲁棒性和长期预测能力需要提高。本章对预测模型进行优化,采用主成分分析方法优化模型的输入层参数,采用注意力机制优化神经网络结构。采用贝叶斯优化方法确定神经网络超参数的最优值。

4.1 基于 PCA 的输入层优化

用于燃料电池寿命预测模型训练的数据集中多达 25 组特征,在上一章使用了全部的参数作为输入层参数,严重的影响了训练效率。其中一些参数之间具有较强的相关性,比如其中的总电压和单节电压之间、流量与压力之间、电流与电压之间相互影响,又有一定的独立性。为了在保留数据精度的前提下简化特征提取过程提高效率。采用主成分分析方法优化数据预处理过程。

4.1.1 主成分分析计算步骤

主成分分析的核心思想是降维,本文的计算步骤如下所示,

1) 根据标准化原始数据矩阵,计算相关系数矩阵 R ,公式如(4.1)所示;

$$R = [r_{ij}]_p, |\lambda I_p - R| = 0, i = 1, 2, \dots, n; j = 1, 2, \dots, p \quad (4.1)$$

2) 计算相关系数矩阵 R 的特征方程,计算特征向量和特征值;

3) 计算方差贡献率和累积贡献率。累积贡献率 η 的计算公式如公式(4.2)所示,累积贡献率 η 的大小决定了主成分个数,累积贡献率 η 越大,处理后的综合变量解释原始变量的能力越强,信息损失的越少。为了在降低变量个数的同时保证信息损失的较少,本文设置选取主成分个数 k 为满足累积贡献率大于等于 80% 的最小正整数,且 $k < p$ 。

$$\eta = \frac{\sum_{i=1}^k \lambda_i}{\sum_{i=1}^p \lambda_i}, k=1, 2, \dots, p \quad (4.2)$$

4) 计算主成分载荷矩阵,载荷矩阵表示原始数据协方差的特征值,计算公式如(4.3)所示:

$$I_{ij} = \sqrt{\lambda_i} e_{ij} \quad (4.3)$$

5) 计算各主成分的分值, 将得到的分值作为 LSTM 神经网络的输入值。

4.1.2 基于 PCA 的优化步骤

寿命数据集中共包括 25 个特征变量。除了作为寿命衰减程度的标签变量-电堆电压外, 对其余变量的相关关系进行分析, 采用 Spearman 相关系数。分析结果如图 4.1 所示。

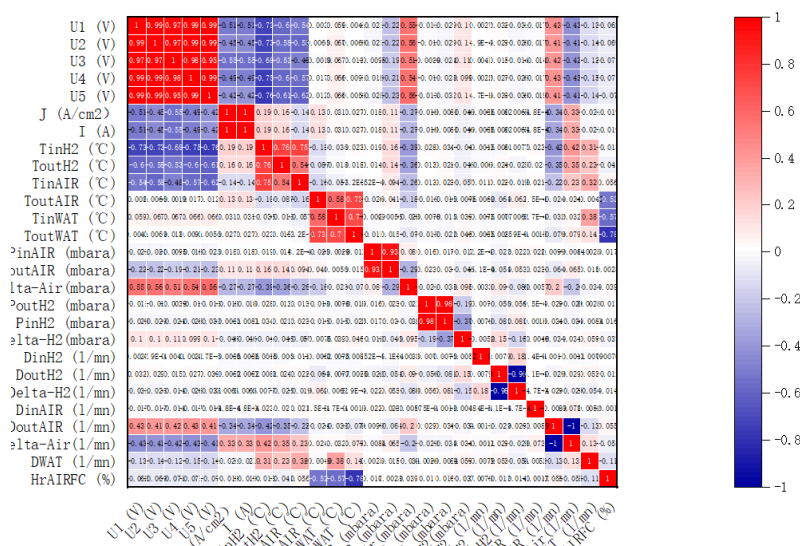


图 4.1 燃料电池测量参数热力图

Fig.4. 1 Thermal diagram of fuel cell measurement parameters

从图中可以看出, 部分原始数据之间的相关系数大于 0.5, 存在较显著的相关性, 可以采用主成分分析法进行降维处理, 通过计算方差贡献率进行主成分选择, 得到不相关的新变量, 根据新变量的特征值提取燃料电池的寿命的关键影响因子。最终提取燃料电池的主成分并使用新变量训练模型并预测。

4.2 基于注意力机制的结构优化

主成分分析优化仅考虑了输入特征的选取, 但无法全面的考虑输入特征与寿命之间的影响程度。当时序数据过长时, 容易发生信息的丢失, 导致预测效果变差。因此引入注意力机制。注意力能够挑重点, 就算信息比较长, 也能从中间抓住重点, 不丢

失重要的信息。图 4.2 描述了优化后的增加注意力机制的燃料电池寿命预测框架，在多层 LSTM 层后加入一层注意力层，对模型的输入添加不同的权值，增加对预测结果影响因素大的特征，抑制对预测结果影响小的特征。

注意力机制的具体的计算过程如下所示。将 LSTM 层最后一层输出的隐藏层的每个时刻状态作为隐藏状态集合 $A = (a_M^1, a_M^2, \dots, a_M^T)$ ，其中 a_M^t 表示第 t 时刻最后一个 LSTM 层的隐藏层状态，并将集合作为注意力机制的输入，可以计算出 t 时刻的输出序列需要关注 t' 时刻隐藏状态的程度 $e_t^t e_t^{t'}$ 可以通过搭建一层神经网络来计算，网络参数是 W_h 和 b_h ，如公式 (4.4) 所示^[75]：

$$e_t^t = \tanh(W_h [a_M^{t-1}, a_M^t] + b_h) \quad (4.4)$$

其中， a_M^{t-1} 表示上一个时刻序列的隐藏状态， $a_M^{t'}$ 表示 t' 时刻的隐藏状态。同样采取拼接的方式将 a_M^{t-1} 和 $a_M^{t'}$ 进行拼接，以方便矩阵计算。得到 e_t^t 后就可以计算出 t 时刻的输出序列关注 t' 时刻隐藏状态的权重 $\alpha_t^{t'}$ ，计算方法如公式 (4.5) 所示，即求 t' 时刻的关注程度占所有时刻的关注程度的比重^[75]。

$$\alpha_t^{t'} = \frac{\exp(e_t^t)}{\sum_{t'=1}^T \exp(e_t^{t'})} \quad (4.5)$$

因此，求得 t 时刻的总权重因子 r ，如式 (4.6) 所示：

$$r_t = \sum_{t'=1}^T \alpha_t^{t'} a_M^{t'} \quad (4.6)$$

最终求得 t 时刻的输出值如式 (4.7) 所示：

$$y_t = \text{LSTM}(r_t, a_{t-1}, c_{t-1}) \quad (4.7)$$

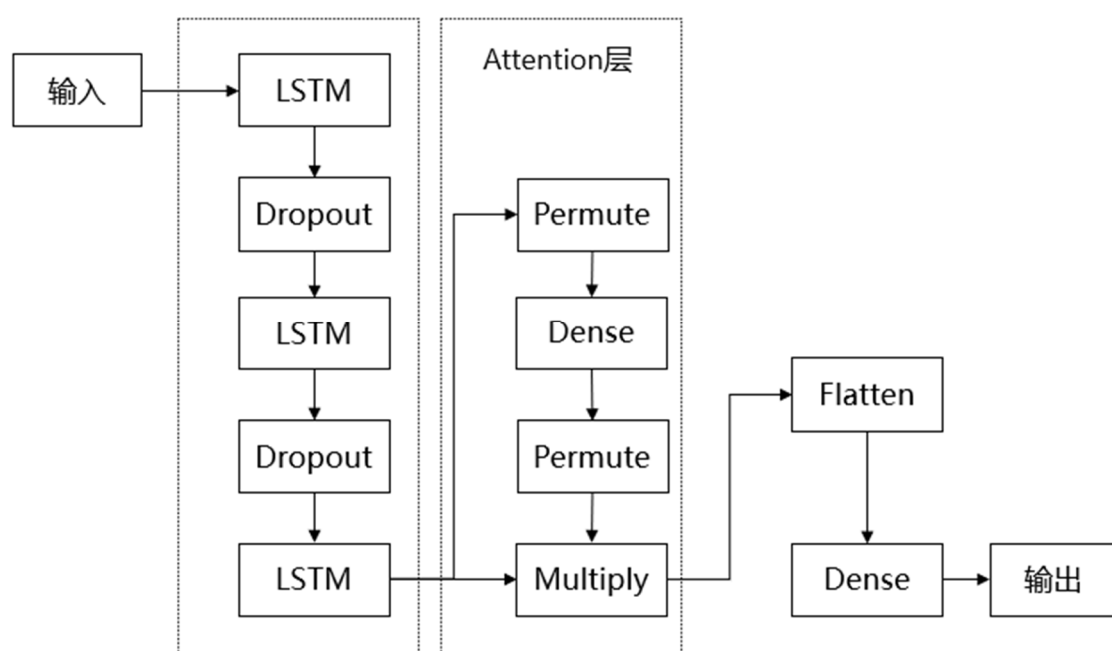


图 4.2 基于注意力机制的 LSTM 网络结构

Fig.4. 2 LSTM Network Model based on attention Mechanism

4.3 LSTM 神经网络超参数优化

根据 4.1-4.2 的步骤,将模型优化为基于注意力机制的 LSTM 混合模型后,模型的超参数如果仍然按照人工经验选取,费时费力且容易选取不当。为解决该问题,本文选择使用超参数优化算法进行超参数的自动选取,将模型结构进一步优化为 PCA-BA-Attention-LSTM 混合结构,也能够进一步提升预测精度和预测效果。

在章节 2.5 中,介绍了一些超参数优化方法,但是这些方法并不适用于本文的神经网络模型,因为通过各种超参数组合训练神经网络计算量很大,需要很长的时间,但是从工程应用的角度,我们希望燃料电池神经网络预测模型的训练时间能够更加的高效。因此评估的参数组合的数量不能太多,只评估少数的参数组合的性能。最适合的方法就是贝叶斯优化和动态资源分配。

4.3.1 贝叶斯优化计算过程

贝叶斯优化的计算过程如下,首先,根据已有的 N 组试验结果来建模高斯回归过程模型并计算前 N 组的后验概率分布。这个过程获得了每个点对应的超参数预期均值和方差,均值结果代表预期效果,方差结果代表预期效果的不确定性,为了得到全局

最优点而不是局部最优解，应平衡选择方差结果和选择均值结果的比例。因此定义一个收益函数来判断当前的样本能否给建模带来更大的收益。本文选择期望改善（Expected Improvement）函数作为收益函数，EI 函数的计算公式如（4.8）、（4.9）所示。

$$I(x) = \begin{cases} (\mu(x) - f(x^*)) \Phi(z) + \sigma(x) \phi(z) & \sigma > 0 \\ 0 & \sigma = 0 \end{cases} \quad (4.8)$$

$$z = \frac{\mu(x) - f(x^*) - c}{\sigma(x)} \quad (4.9)$$

其中, $f(x^*)$ 是当前的最大值, μ 是均值, σ 是标准差, c 是平衡选择方差和均值的比例。

4.3.2 基于贝叶斯优化的 LSTM 超参数寻优步骤

首先对表 3.2 中的超参数分别进行选择优化。学习率过大会导致跳过最优解，学习率过小会导致收敛速度慢，由于实验数据集较大，将学习率设置为在 0.01、0.0001、0.005 之间选择。隐藏层神经元个数和 LSTM 层数决定了模型挖掘数据特征的深度，数量过少，对于特征的挖掘不够深入，数量过多又会增加模型的复杂性，影响收敛速度，可能导致陷入局部最小值，为了尽可能的挖掘本文按照经验设置了搜索的范围。数据的批处理大小影响模型训练效率，批处理大小的选择应兼顾训练时间和训练效果，选择一个适中值。Dropout 系数和时间步长选择一个较大的范围进行搜索。本章要优化的 LSTM 模型超参数选取及范围如表 4.1 所示。可以看到，在采用贝叶斯算法优化超参数时，限制了搜索范围到一个较小的空间。这是因为对于隐藏层数和神经元数来说，数量过多相当于增加了很多与当前预测时刻的非强相关信息，这不仅对模型性能提升的作用有限，还容易导致模型训练的过拟合，并且增加优化过程中的计算成本。

然后根据 LSTM 模型超参数范围，随机化初始样本点并输入到高斯过程中，按照正常的训练步骤对 LSTM 模型进行训练，将训练得到的损失函数值修正高斯过程模型。利用收益函数在修正高斯过程模型中选取下一组样本点，将新样本点作为输入更新至 LSTM 模型中进行训练，形成一次迭代过程，反复的迭代至新样本点对应的目标函数符合要求，终止贝叶斯优化过程，输出当前选取的最佳参数组合。本文选择 RMSE 作为优化的目标函数和评价指标，为了展示优化效率，本文选用 time 函数进行读取优化过程时间。

表 4.1 LSTM 模型超参数搜索范围

Table4. 1 Hyperparametric search range of LSTM model

参数名称	参数搜索范围
学习率	0.01、0.005、0.001
隐藏层神经元个数	(2, 256)
批处理大小	(20, 150)
Droupout 系数	(0.01, 0.5)
LSTM层数	(1, 9)

4.3.3 动态资源分配

为了进一步提高模型的推广能力、泛化能力，需要使用验证集与提前停止搭配的方式优化训练过程。这是由于神经网络的拟合能力非常强，因此比较容易在训练集上过拟合。

基本概念是将分类器应用于与训练集不同的一组数据集命名为验证集。然后使用验证集上的性能来确定是否提前停止，在这种情况下，训练集用于找到一个小的假设空间，而验证集用于从该空间选择一个假设。在一个大的假设空间中，最小化训练误差通常会导致过度拟合。当训练误差最小化时，训练集可用于建立一组选择，而验证集用于反转或修改这些选择。本文设置验证集的比例是全部数据的 10%。

4.4 改进后的燃料电池剩余使用寿命预测方法

根据 4.1-4.3 节，本文提出的改进后预测方法的具体实现步骤总结如下：

- 1) 第一步是采集寿命试验数据形成离线的寿命数据库，并对采集的原始试验数据进行数据预处理。数据预处理过程分别采用数据重构、数据平滑以及归一化的方法处理数据，最后采用 PCA 优化输入层维度。确定模型的输入和输出。
- 2) 将数据库中的数据分割成训练集、验证集、测试集，具体细节在 3.2 节、4.3 节中描述。
- 3) 下一步是确定用于预测的 LSTM 模型的基本结构。模型的输入层为 6，模型的输出层设置为 1；注意力层被放置在 LSTM 堆叠层和输出层之间。LSTM 堆叠层和注意力层的节点数分通过超参数优化方法最终确定。网络结构的细节将在结果和讨论中进一步介绍。然后设计模型的优化器(ADAM)和损失函数(mse)、评价函数(mae、RMSE、R2)。在此基础上，设计了基于注意力模型的其他重要设置，包括注意力层权重向量的计算，计算步骤在 4.2 中提到。

- 4) 神经网络的其他关键参数，如批次大小、时间步长、训练周期大小等，也通过贝叶斯超参数优化方法确定，贝叶斯优化细节在 4.3 中提到。
- 5) 使用划分好的训练数据集送入建立好的模型进行训练，使用划分好的测试数据集送入模型进行寿命预测。

4.5 基于改进后的寿命预测方法的预测结果分析

使用改进后的 PCA-BA-Attention-LSTM 预测模型预测不同起点的寿命数据，预测的结果如图 4.3、表 4.2 所示，图 4.3 是同一数据集不同预测起点的预测效果。可以看出改进后的模型预测的效果非常好，无论是短期寿命预测还是长期寿命预测，预测精度都有了很大的提升，说明改进后的模型能够深度的挖掘数据之间的联系。其中 70%训练数据的预测效果提升较小，相比改进前的模型预测结果，MAE 从 0.9% 下降至 0.5%，RMSE 从 1% 下降至 0.9%。30%训练数据的预测效果提升较大，相比改进前的模型预测结果，MAE 从 0.0866 降低至 0.017%，RMSE 从 0.083 降至 0.023%。使用 50%训练数据预测的燃料电池寿命与真实寿命仅偏差 1h。使用 30%训练数据预测的燃料电池寿命与真实寿命仅偏差 3h。这说明可以通过改进后的预测模型实现长期或者短期的寿命预测。这对于燃料电池的维护有着重要的作用。在燃料电池的实际应用中，可以将燃料电池每日或者每周的运行数据定期发送至云端形成数据库，通过该预测模型可以预测未来一周或一个月的衰减趋势，当预测衰减趋势超过设定值时，燃料电池应进行维护。

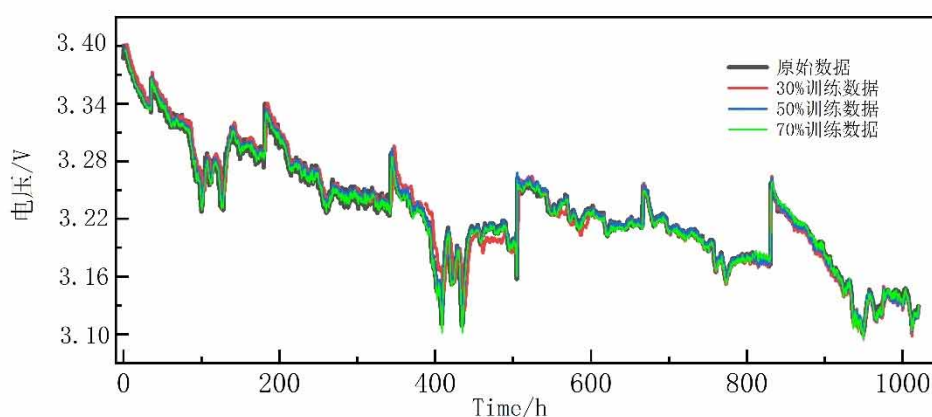


图 4.3 LSTM 模型预测结果-电压趋势

Fig.4.3 Predict Results of LSTM model- Voltage variation trend

表 4.2 改进后模型的预测精度

Table 4. 2 Prediction accuracy of the improved model

预测起点	RMSE	MAE	R^2
50%训练数据	0.008	0.006	0.985
30%训练数据	0.010	0.009	0.981
70%训练数据	0.003	0.002	0.991

为了验证基于主成分分析法的数据预处理对燃料电池寿命预测效率的提升，在保证和第三章 LSTM 模型相同的情况下，仅通过主成分分析法优化输入变量。与第三章的预测结果进行比较。对比结果在 4.4.1 中进行说明。

为了验证基于注意力机制优化的 LSTM 模型对燃料电池寿命预测效率的提升，在已采用主成分分析法优化输入变量基础上，分别将采用第三章的堆叠 LSTM 模型和基于注意力机制优化的 LSTM 模型对寿命数据进行预测的预测结果进行对比，比较预测结果的精度和效率。对比结果在 4.4.2 中进行说明。

为了验证贝叶斯算法对超参数优化的有效性，在第三章的模型结构基础上使用贝叶斯优化算法对超参数进行优化，并对相同的测试数据进行预测，比较预测结果的精度和效率。为了验证贝叶斯算法在同类超参数优化算法之中的优势，采用网格搜索、随机搜索、遗传算法分别对相同结构模型的超参数进行优化，对比结果在 4.4.3 中进行说明。

4.5.1 主成分分析优化前后对比

主成分分析降维处理后的结果如表 4.3 所示，除总电压外 24 个自变量数据的主成分方差百分比按从大到小，依次排列，从表中可以看出前 4 个主成分的累积贡献率已经达到了 97%以上，因此提取 4 个主成分。按照每个成分的特征矩阵选出对该成分贡献最大的变量，分别是出口的压力和入口的温度，在入口压力保持不变的情况下，出口的压力反映了燃料电池的亲疏水管理，入口的温度决定了燃料电池的真实湿度状态，其都对可以看到与经验分析结果基本相似，侧面验证了主成分分析结果的可靠性。主成分分值加上总电压和电流，优化后的输入变量降至 6 维。

使用主成分分析优化后的输入变量进行预测，表 4.4 展示了优化前后的预测结果对比，优化前后的模型结构与超参数与第三章保持一致。可以看出，预测速度有了明显

的提升，而预测精度也略有提升，这说明主成分分析方法有效的提取了数据之间的相关性，去除了数据的冗余。

表 4.3 方差及主成分贡献率

Table4. 3 Eigenvalue and principle component contribution rates

成分	方差百分比%	累积百分比%	成分中占比最高的变量
1	61.37	61.37	PoutH2
2	19.48	80.85	PoutAir
3	14.33	95.18	TinH2
4	1.89	97.07	TinAir

表 4.4 LSTM 模型精度

Table4. 4 LSTM model accuracy

模型类别	RMSE	MAE	R2	Time/s
主成分分析优化前 (50%训练数据)	0.014	0.011	0.983	980
主成分分析优化前 (30%训练数据)	0.056	0.053	0.92	830
主成分分析优化后 (50%训练数据)	0.012	0.010	0.985	276
主成分分析优化后 (30%训练数据)	0.051	0.048	0.941	243

4.5.2 注意力机制优化前后对比

选取注意力机制优化前后的预测结果进行对比，可以看出注意力机制的增加对于模型预测效果和预测精度的提升起到了重要的作用，比较优化前后预测模型对于 50%训练数据的预测结果，可以看出 RMSE 从 0.0315 降低至 0.012，MAE 从 0.031 降低至 0.009，比较优化前后预测模型对于 30%训练数据的预测结果，可以看出 RMSE 从 0.081 降低至 0.023，MAE 从 0.0798 降低至 0.021。说明通过增加注意力机制，模型性能得到了提高，模型的长期预测能力更是有了大幅度的提升。

表 4.5 注意力机制优化前后预测精度对比

Table4. 5 Comparison of prediction accuracy before and after attention mechanism optimization

模型类别	预测起点	RMSE	MAE	R2
注意力机制 优化前	30%训练数据	0.051	0.048	0.941
	50%训练数据	0.012	0.010	0.971
注意力机制 优化后	30%训练数据	0.019	0.018	0.983
	50%训练数据	0.007	0.005	0.989

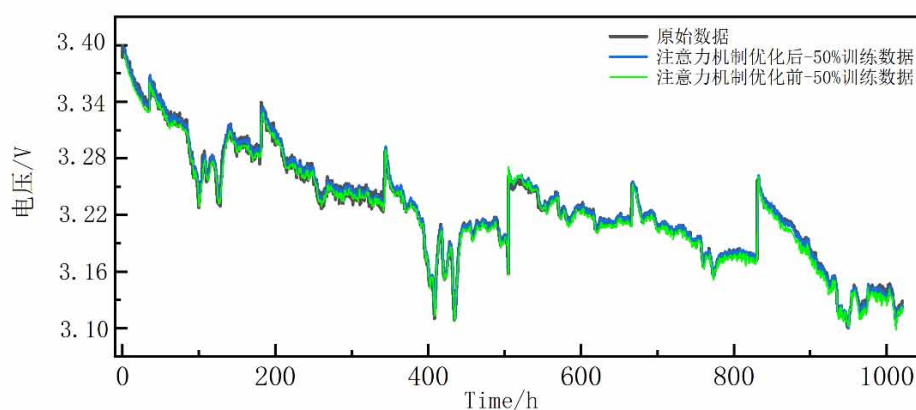


图 4.4 50%训练数据下 LSTM 模型预测结果-电压趋势

Fig.4. 4 Predict Results of LSTM model by 30% train data - Voltage variation trend

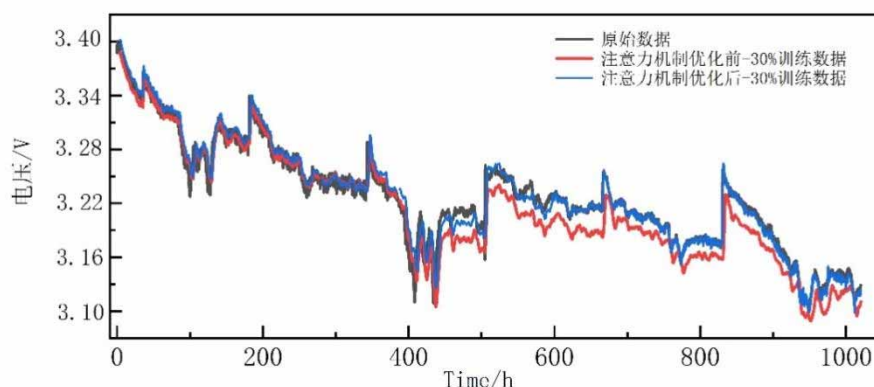


图 4.5 30%训练数据下 LSTM 网络预测结果-电压趋势

Fig.4. 5 Predict Results of LSTM network by 30% train data- Voltage variation trend

4.5.3 贝叶斯算法优化前后对比

贝叶斯算法优化后的最优超参数数值如表 4.6 所示，可以看出不同训练数据长度的超参数有着一定的差异，这说明通过贝叶斯算法优化超参数的必要性。70%训练数据的最优超参数数值要小于 30%训练数据的最优超参数数值，这说明了不同的预测对象对应的最优超参数选择也是有所差异的，其中主要体现在 LSTM 层数的差异，说明 LSTM 层数对于挖掘数据的深层次信息有着重要的作用，但时对于数据量较大时，LSTM 层数的增加容易导致过拟合现象的出现。

表 4.6 预测模型最优超参数
Table4. 6 Optimal parameters of prediction model

参数名称	70%训练数据下最优参数	50%训练数据下最优参数	30%训练数据下最优参数
学习率	0.001	0.001	0.001
隐藏层神经元个数	96-68-32	168-96-68	168-96-96-68
批处理大小	50	32	12
Droupout 系数	0.02	0.02	0.01
LSTM 层数	3	3	4

取 50%长度的训练数据进行训练并预测。将贝叶斯算法优化前后的预测结果进行对比，选取不同超参数优化方法的预测结果进行对比。可以看出不同的超参数优化方法都可以起到提高预测效果的目的，其中，贝叶斯优化的预测效果和优化效率的综合结果是最佳的。

表 4.7 优化前后模型精度
Table4. 7 Model accuracy before and after optimization

起点	预测起点	RMSE	MAE	R^2
贝叶斯优化前	50%长度	0.007	0.005	0.989
	30%长度	0.019	0.018	0.983
贝叶斯优化后	50%长度	0.005	0.003	0.992
	30%长度	0.015	0.013	0.986
随机搜索优化后	50%长度	0.008	0.009	0.987
	30%长度	0.014	0.011	0.982

遗传算法优化后（粒子群）	50%长度	0.009	0.007	0.988
	30%长度	0.013	0.011	0.985

4.5.4 改进效果总结

从以上结果可以看出每一种优化手段都对 LSTM 模型的改进起到了促进的作用，并且混合结构更好地提高了预测的精度和效果。

4.6 本章小结

在基于 LSTM 神经网络的寿命预测模型缺乏鲁棒性的情况下，本章使用改进的 LSTM 预测模型进行燃料电池的寿命预测。并将改进后的预测结果与改进前的结果进行对比。本文主要通过主成分分析法优化数据预处理，增加注意力机制优化模型结构，基于贝叶斯优化超参数。根据该模型进行的寿命预测实验取得了非常好的预测效果，表明改进的 LSTM 预测模型相较于改进前模型取得了较大的提升，也为下一章的燃料电池诊断模型提供了充分的前期验证。

第五章 燃料电池水管理故障的在线诊断与恢复方法

我国燃料电池技术存在基础研究相对薄弱、核心技术水平与国际先进水平差距较大的问题。目前，燃料电池系统关键材料的开发预加工多停留于样件或者小批量阶段，核心零部件缺乏大批量、稳定的产品供应，在工程应用、加工工艺、质量管控等方面都有待加强，这些问题直接影响了燃料电池系统的稳定性、可靠性。

在线故障诊断与恢复策略是保证燃料电池系统安全连续运行的关键技术。燃料电池系统零部件的故障可以通过一个或多个零部件量程阈值来进行自诊断。但是燃料电池电堆的部分故障难以通过变量阈值直接进行判定，其中燃料电池水管理故障更是难以在当前的燃料电池系统直接实现在线诊断。为了实现燃料电池水管理故障的在线诊断，应考虑两方面的问题：一方面，从系统中收集和利用什么信息来实现诊断分析，另一方面，如何兼顾故障诊断算法的准确性以及诊断方法的计算效率，因为当前燃料电池系统的诊断算法需要写入计算能力有限的嵌入式控制系统中。本章首先分析燃料电池系统上集成的传感器参数信息哪些用于燃料电池水管理故障诊断，然后基于第四章的结果建立基于 LSTM 神经网络的故障诊断模型，利用实验得到的故障数据集训练，并将训练好的模型写入控制器中，在系统运行过程中采集多维特征变量滚动输入至诊断模型进行计算，输出层通过 softmax 函数得到预测值的概率分布，最终得到燃料电池系统的水管理故障等级，实现在线故障诊断。针对诊断结果，给出了对应的在线恢复策略。

5.1 燃料电池故障诊断流程

燃料电池的故障在线诊断流程可以分为三个部分，首先是数据的采集与分析，设计故障模拟实验或者直接提取真实故障工况下的数据，处理数据并提取故障特征变量，形成故障数据库，第二步是训练模型，建立故障诊断模型，利用故障数据库训练诊断模型。第三步是进行在线诊断，将训练好的模型写入燃料电池系统控制器中，运行燃料电池系统实施滚动预测，燃料电池故障诊断流程总结如下。

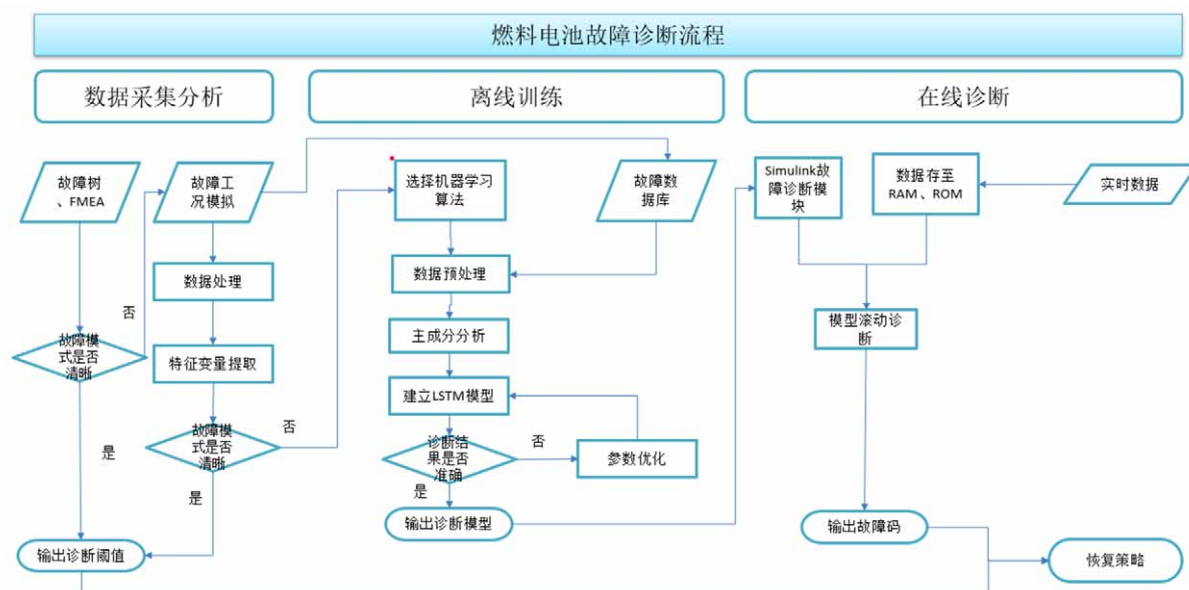


图 5.1 燃料电池故障诊断流程

Fig.5.1 Fuel cell fault diagnosis process

5.2 故障诊断模型的输入、输出参数

本章利用采集到的传感器参数作为模型的输入，因此，故障诊断的准确度与输入层的传感器参数变量息息相关。燃料电池系统传感器采集的关键参数多达 85 个参数。对于诊断模型来说高维度的输入变量会影响模型的计算效率和精度，需要筛选对于诊断模型有用的输入参数。由于燃料电池的水管理故障具有耦合性、随机性和不确定性。直接通过主成分分析法进行降维容易出现误判。因此采用专家经验与主成分分析相结合的方式筛选。

首先通过燃料电池水传输机理对选择的输入参数进行分析，如下所示。

当发生水淹或者膜干时，由于单电池流体分配一致性的差异，单节电压会受到不同的影响，呈现出参差不齐的电压差值，因此与单电压有关的参数应作为模型输入。在高电流密度条件下，EOD 可能会导致阳极干燥和阴极水淹，因此将电流密度作为模型输入。EOD 系数与温度相关，当温度升高时，EOD 系数显著增加。因此，表征电堆温度和气体温度等相关温度参数也应被作为模型输入。由于浓度梯度和压力差，阴极产生的过量水可能会输送到阳极，导致阳极的水淹。因此应将阴极、阳极压力参数作为模型输入。另外，氢气吹扫阀、分水器的状态、气体速率也应作为模型输入。在燃料电池水淹前，流道内的液态水不断增加，进而造成燃料电池系统零部件的额外功耗，尤其是氢气循环泵，所以采用氢气循环泵的电流和转速、氢气排气阀的开关频率作为

模型输入。燃料电池的高频阻抗与膜的水合状态存在一定的关系，在高频电流信号激励作用下，燃料电池电压的动态响应取决于质子传导、氧气扩散和水传输影响。在高频阻抗测量短暂的几毫秒内，气体扩散层和流道内物质组分变化很微弱，所以高频阻抗的大小一定程度上可以反应膜电极的结合水，因此采用高频阻抗值作为模型输入^[76]。

通过上述机理分析可以得到对燃料电池水管理故障诊断有利的相关参数。但是其中与单电压偏差、压力、温度相关的传感器参数仍然较多，单电压偏差中包含 185 节的单电压参数，压力包括空气路参数、氢气路参数共 13 个，温度包括空气路、氢气路温度共 14 个。所以本文利用主成分分析法继续对燃料电池系统的传感器采集参数进行降维筛选，主成分分析步骤见 4.1 节所示。经过专家经验以及主成分分析法降维后的输入参数如表 5.1 所示，共有 12 个参数。

燃料电池的故障状态中水管理故障是影响最严重的也是难以区分的，其余故障可以通过传感器阈值来界定，本章仅诊断水管理故障，将燃料电池水管理的故障模式分为正常状态、水淹状态、膜干状态三类，作为输出参数，见表 5.2 所示。

表 5.1 模型输入参数
Table5. 1 Model input parameters

参数名称	参数编号	单位
单电压偏差	X1	V
电流密度	X2	mA.cm-2
氢循环泵电流	X3	A
氢循环泵转速	X4	rpm
阳极入口温度	X5	℃
冷却液出口温度	X6	℃
阴极入口压力	X7	kPa
阴极出口压力	X8	kPa
阳极分水器出口压力	X9	kPa
空气流量	X10	g/s
氢气排气阀	X11	s/s
高频阻抗	X12	mΩ

表 5.2 模型输出参数
Table5.2 Model output parameters

健康状态等级	描述
0	正常状态
1	膜干状态
2	水淹状态

综上所述，本节建立了故障诊断模型的输入、输出参数，并分析了燃料电池系统的参数与燃料电池内部水管理状态的关系，首先通过专家经验分析结果选择关键传感器的参数作为模型输入，对于维度较高的电压参数、温度参数、压力参数采用主成分分析方法降维处理，避免了模型较高的计算量。所有模型输入都使用燃料电池系统已有且价格便宜的传感器参数，从而避免安装更多传感器占用系统布局并节省系统成本。

5.3 故障诊断模型的数据样本构建

故障模拟实验及数据获取、标签标注过程在 2.2 中描述。在得到含有标签的故障数据集后，在 5.2 对采集到的传感器参数进行降维，筛选出重要的输入参数。本节构建用于训练和测试诊断模型的数据样本。由于 LSTM 主要用于处理时序数据，故将每 200 个采样点的数据（100s）作为一个样本。在构建数据集时，舍弃部分区分度不高的数据。由于水淹状态容易导致燃料电池的不可恢复损伤，因此水淹状态采集数据较少，为了数据平衡，将水淹状态的数据标签翻倍。最终数据划分情况如表 5.3 所示。

表 5.3 LSTM 模型参数设置表
Table5.3 LSTM model parameter setting table

故障分类	训练样本	测试样本
正常状态	6890	1720
膜干状态	5120	1280
水淹状态	4630	1160

5.4 水管理故障诊断模型的建立与训练

故障诊断与寿命预测有着极大的相似之处，因此本章基于 LSTM 神经网络模型基本结构建立了燃料电池故障诊断模型框架，LSTM 模型的基本结构在 2.4、3.3 中进行了详细的描述。燃料电池的水管理故障诊断模型框架按照下述步骤建立：

- 1) 建立燃料电池故障数据集，利用燃料电池阻抗仪测量值进行故障标签的标注，故障模拟及故障标签标注的具体步骤见 2.2.2。故障数据集中样本的划分步骤及结果见 5.3。使用故障模拟测试数据集对模型进行训练。
- 2) 确定模型输入、输出参数，输入参数选择及降维过程在 5.2 中描述。模型的输入层设置为 12，输入变量见表 5.1。模型的输出层为 3，输出向量见表 5.2。
- 3) 为了保证模型在车载嵌入式平台的在线运行，减少计算负担，采用单隐层 LSTM 作为诊断模型的主体结构，模型的输出层采用 softmax 分类器对 LSTM 模型的输出进行分类，给出最终诊断结果。模型结构见表 5.4 所示。
- 4) 模型的隐藏层神经元数、隐藏层数、Dropout 系数、激活函数采用贝叶斯优化方法进行寻优确定模型超参数。表 5.5 展示了贝叶斯优化后的诊断模型的结构和参数。采用准确率acc来作为模型的评价指标，公式如下所示：

$$\text{acc} = \frac{\text{TP} + \text{TN}}{\text{样本总数}} \quad (5.1)$$

*TP*代表模型预测为正样本，实际也为正样本；*TN*代表模型预测为负样本，实际也为负样本。

表 5.4 模型结构表

Table5.4 model structure table

结构层	网络参数
LSTM	10*32
Dense	32
Activity	32
Dense	3

表 5.5 LSTM 模型参数设置表

Table5. 5 LSTM model parameter setting table

参数名称	参数值	参数名称	参数值
输入层数据维度	9	丢弃比例	0.02
隐藏层数据维度	32	激活函数	Sigmoid
批大小	64	下降方式	Adam
时间步长	10	最大迭代次数	300
LSTM 层数	1	正则化	Early stopping

为了验证优化后的模型故障诊断的诊断精度，选取不同时间的故障数据集进行测试。诊断结果在 5.6 节中进行说明。为了验证优化后的模型刷写至控制器后的实际诊断效果，在系统上测试了车辆正常加减载工况下以及异常条件工况下的诊断结果。测试结果在 5.6 节中进行说明。

5.5 水管理故障诊断模型的编译与应用

本文采用 X 公司开发的配套燃料电池控制器 (FCU) 的燃料电池系统进行研究, 燃料电池系统框架及控制器示意如图 5.2、5.3 所示, 控制器固定在。控制器以 MC9S12XEP10048MHz 微处理器为核心, 包含 1000Kb ROM 和 64KB RAM 的存储空间, 模拟量输入、输出通道、数字量输入通道、CAN 传输通道、时间测量通道和功率输出通道等配置。该公司提供基于 Simulink 模型的驱动程序。其 MCU 级和控制器级的两种封装将常用驱动以 Simulink 库的形式提供, 并开放相关接口供用户配置调用。

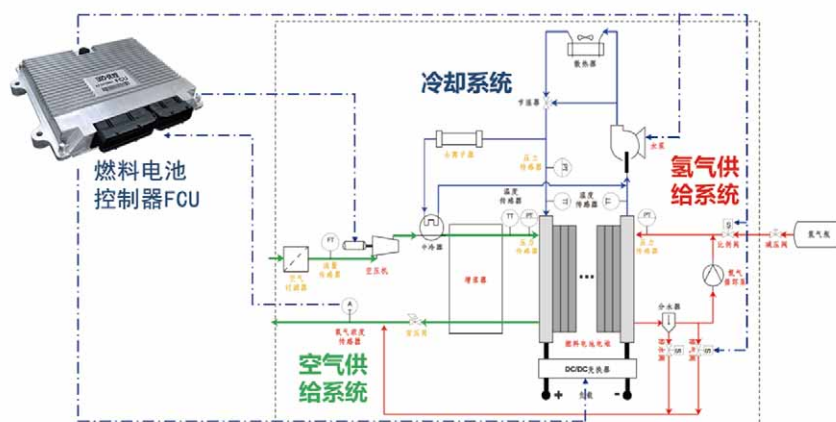


图 5.2 包含控制器的燃料电池系统架构

Fig.5.2 Fuel cell system containing controller



图 5.3 燃料电池控制器

Fig.5.3 Fuel cell system controller

本文在该控制器包含的各燃料电池子系统控制模块基础上增加燃料电池水管理故障诊断模块，实现步骤如下所示：将训练好的诊断模型架构和权重保存为 h5 文件，使用 Matlab 读取模型权重数据导入 Matlab 中的 Deep Neural Network 工具箱并搭建 LSTM 诊断模型，使用 Simulink 中的 S-function 模块调用诊断模型。使用 Simulink 搭建燃料电池水管理故障诊断模块嵌入到控制器中的故障诊断总模块。

由于燃料电池中的水的累积受时间累积效应的影响，因此模型的输入向量应该包含历史记录的传感器数据，控制器中的传感器数据临时存储在 RAM 中，考虑到 RAM 容量限制以及诊断的准确性，设置诊断模型的时间步长为 10s。当模型开始运行时，会将当前时间步向前 10s 进行相关传感器数据提取作为模型在当前时间步的输入。当控制器运行时，会执行滚动预测。为了减少控制器的计算量和存储量，将控制器程序的执行周期设置为 0.5s。

基于 Matlab 的 RTW 模块功能衍生的底层、应用层代码自动生成和下载技术，得到各种 c 文件和 h 文件，同时直接生成基础版本的 ASAP2 标准的描述文件（a2l），a2l 文件可以轻松实现控制器变量在线标定，并可方便地利用现有第三方工具进行标定和测试。将基础版本的 a2l 与已有的 CCP 通讯协议的头文件进行合并，最后与代码编译后含有的地址信息文件进行合并，就可以得到用于标定测试的最终版 a2l 文件。最后使用编译器将 a2l 文件刷写至控制器后使用 INCA 软件连接控制器就可以实现燃料电池系统测试以及在线标定功能。燃料电池控制系统开发与测试流程在图 5.4 中进行描述。

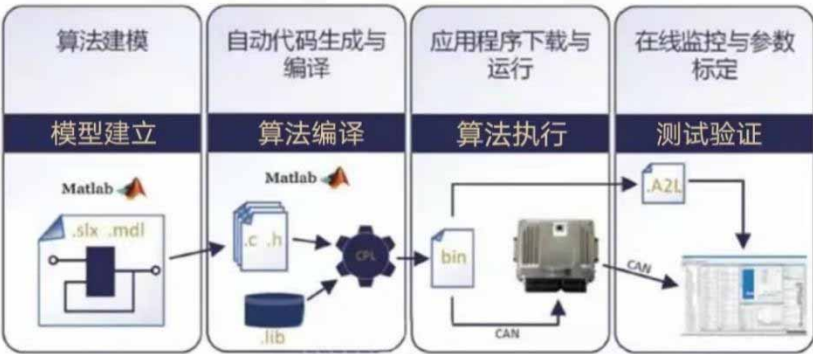


图 5.4 燃料电池控制系统开发与测试流程

Fig.5. 4 Fuel cell control system development and testing process

5.6 基于水管理故障诊断模型的在线故障诊断结果分析

利用划分后的离线故障模拟数据样本对诊断模型进行训练并测试，将模型的诊断精度在表 5.6 中进行了总结，根据实验结果分析，诊断模型在各故障种类上的准确率基本都在 90%以上，并且对正常状态和膜干状态诊断的准确率达到 95%以上。说明诊断模型对于这两种状态的参数变化较为敏感。对水淹状态诊断的准确率较低，仅有 91.9%。这可能是由于水淹状态与其余两种状态在部分参数的变化趋势相近，因此影响了模型的精度。除此之外，模型的诊断耗时以及模型的存储大小都较低，综上所述，该模型能够应用于车用嵌入式控制系统并实现故障诊断功能。

表 5.6 模型诊断准确率
Table5. 6 Diagnostic accuracy of model

实际 诊断 类别	故障诊断类别			
	故障种类	0	1	2
	0	95.1%	1%	3.9%
	1	1.7%	97.8%	0.5%
	2	6%	2.1%	91.9%

表 5.7 模型诊断效率
Table5. 7 Diagnostic accuracy of model

项目	耗时 (ms)	存储 (kB)
结果	< 2	23

在完成模型的离线训练后，将训练好的模型应用到燃料电池系统上进行实车工况下的在线诊断测试。首先在燃料电池系统上测试了车辆正常加减载工况下诊断结果，燃料电池系统首先以怠速功率运行，按照一定步长运行至额定功率后重新降载至怠速功率运行一段时间，整个过程共计 1620s。气体压力、气体流量和电池温度按照正常的燃料电池操作条件设定，由 FCU 控制随电流变化而变化，如图 5.5 所示。通过阻抗仪定频测试燃料电池的阻抗表征水管理状态，同样用 0 表示水管理状态正常，1 表示发生膜干故障，2 表示发生水淹故障，将两者在图 5.6 中进行对比，并将模型诊断结果在表 5.8 列出。

从诊断结果可以看出，在低电密下，尽管没有对燃料电池进行故障模拟条件的切换操作，但随着燃料电池的长时间低电密运行，由于燃料电池在低电密下产水量较少且该燃料电池系统没有外增湿功能，燃料电池逐渐出现膜干的故障现象。此阶段燃料电池诊断模型诊断结果与阻抗仪诊断结果基本一致。在中等电密下运行过程，燃料电池水管理状态平稳，产水量与排水量达到平衡，因此该阶段燃料电池状态始终是无水管理故障模式。随着电流增加至高电密区间，燃料电池产水量增大，而燃料电池系统零部件中的燃料电池空压机以及氢分水阀能力接近上限，排水量逐渐小于产水量。燃料电池内部水状态失去平衡，所以逐渐出现水淹的现象。并且从阻抗仪的测试结果可以看出在高电密起始过程，阻抗仪检测到的燃料电池水状态处于无故障状态与水淹故障状态之间频繁波动，当燃料电池系统在高电密区域运行时间变长后，水淹状态开始累积，燃料电池系统开始长时间处于水淹状态中。而在诊断模型诊断结果中并没有体现出高电密起始阶段的水淹状态和无故障状态之间的切换，并且在高电密区间检测到的水淹起始时间要略晚于阻抗仪的诊断结果。除此外，燃料电池系统的输出结果与阻抗仪设备的测试结果非常吻合，说明该诊断模型能够应用于嵌入式系统进行在线诊断。

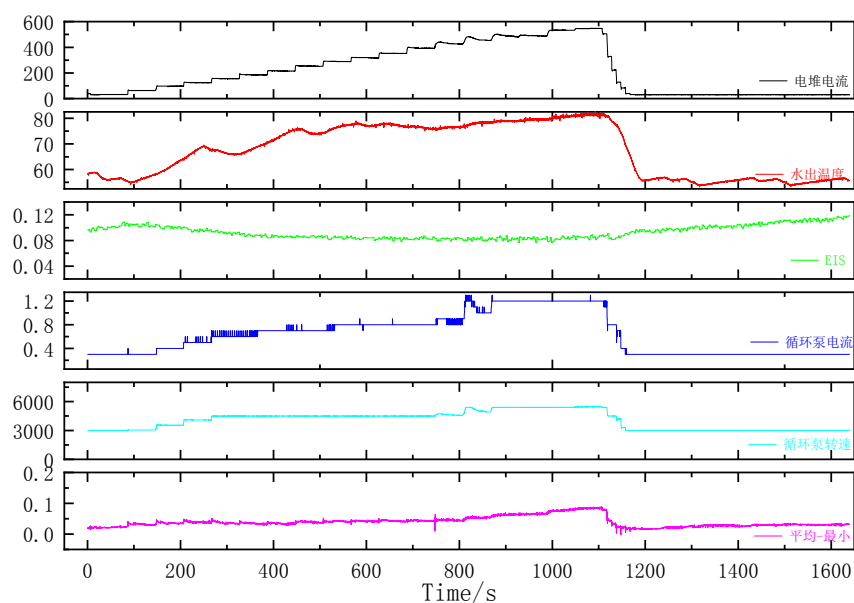


图 5.5 燃料电池系统运行数据
Fig.5. 5 Fuel cell system operation data

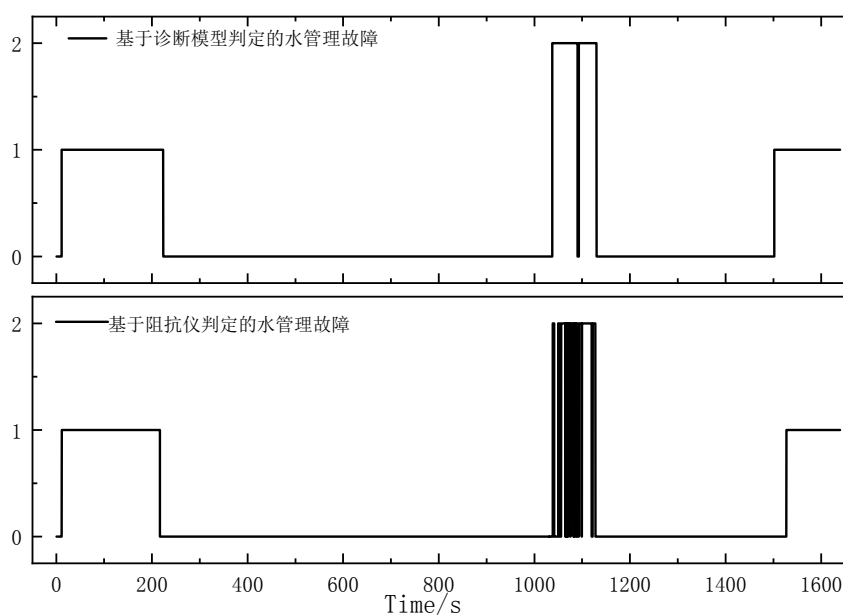


图 5.6 燃料电池系统诊断结果对比
Fig.5. 6 Comparison of diagnostic results of fuel cell system

表 5.8 模型诊断结果

Table5.8 Diagnostic results of model

项目	控制器耗时 (ms)	准确率 (%)
结果	< 100	95

正常的运行工况中出现水管理故障的时间较短且具有偶然性，样本不平衡，可能会导致计算出的诊断准确率有偏差。为了进一步验证诊断模型的准确性，使用 INCA 修改控制器设置了一些异常工况条件，如图 5.7 所示，分别包括以下条件：增加空气流量至超出边界条件、减少空气流量至低于最低边界、升高温度、降低温度至低于边界条件。升高温度和增加空气流量分别产生不同的传感器状态，但都会导致膜干故障，另外两个条件会导致水淹故障。

图 5.8 展示了异常工况条件下的诊断模型诊断结果和阻抗仪实测结果对比。在增大空气流量后，系统很快的给出了膜干燥的信号，说明燃料电池在变干，与阻抗仪的测试结果相符，当快速降低空气流量并瞬间升载后，可以看到系统给出了一个水淹信号但又快速的恢复，说明在空气流量动态调节过程中，燃料电池出现水淹但很快又恢复平衡。当系统运行在低流量和低温度条件下时，可以看到系统预测燃料电池水淹现象很频繁，但阻抗仪的水淹测量值出现的频次要低于诊断模型，这可能是由于燃料电池水管理故障诊断模型受输入参数中的温度压力流量等条件的影响较大，而受外部天气环境的影响较小。而燃料电池系统实际运行过程中，由于外界环境没法始终保持一致性，因此内部水状态会受到外界环境的干扰，同样的温度、压力、流量条件下，外界环境温度低、湿度高，燃料电池内更湿润，外界环境湿度低，温度高，燃料电池内部更干燥。

整个异常条件测试过程共运行 6200s，每 0.5s 采集一组数据，因此共计 12400 组数据。按照每个条件的下的稳定时间将每 100 组数据设置为一个测试样本，共计 124 个样本。计算诊断模型的准确率和召回率，见表 5.9 所示。

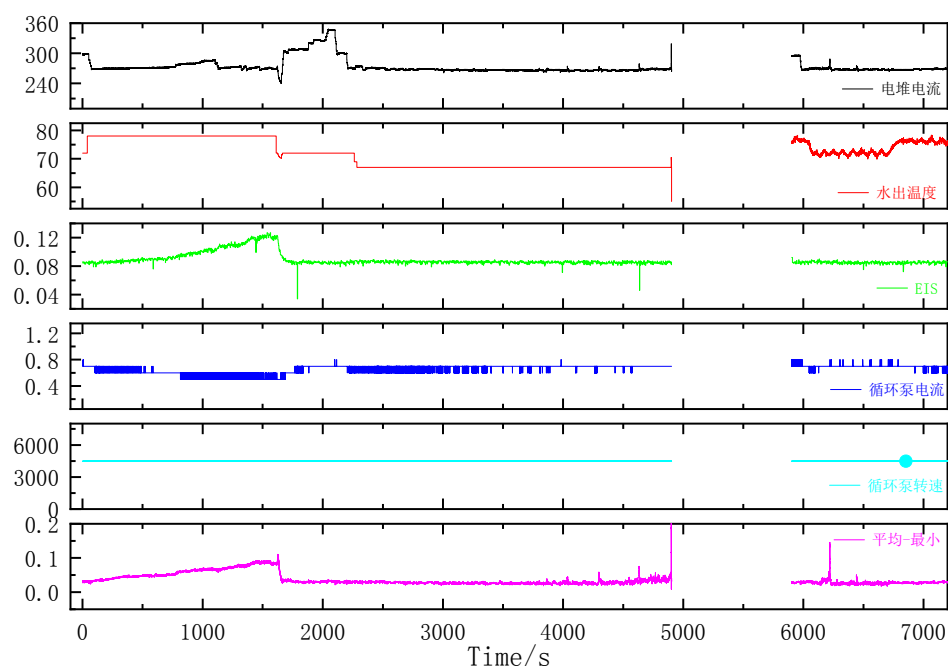


图 5.7 燃料电池系统异常条件运行数据

Fig.5.7 Fuel cell system abnormal condition operation data

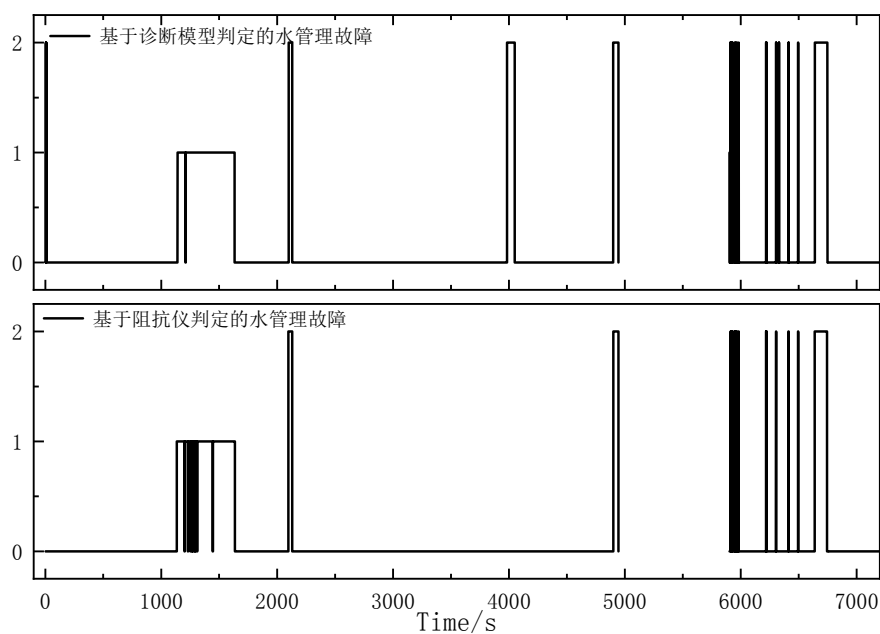


图 5.8 燃料电池系统诊断结果对比

Fig.5.8 Comparison of diagnostic results of fuel cell system

表 5.9 模型诊断结果

Table5.9 Diagnostic results of model

项目	召回率 (%)	准确率 (%)
结果	92	92

为了验证输入参数对于诊断结果的影响，将氢循环泵和氢分水后压力传感器信号屏蔽。运行同样的异常条件工况，将 LSTM 诊断模型诊断结果与正常模型诊断结果进行比较以评估诊断准确性。诊断结果在图 5.9 展示。可以看出，诊断模型对于水淹状态的诊断能力明显变弱，说明水淹故障判定条件与氢气循环泵以及压力条件相关性较大。诊断模型对于膜干故障的诊断效果未发生较大变化，这是由于判定膜干故障因素的输入条件与流量、温度、高频阻抗相关性更大。综上，诊断模型的输入参数的选择对于模型性能影响非常大，采用本文设定的输入参数对于诊断模型是有利的。

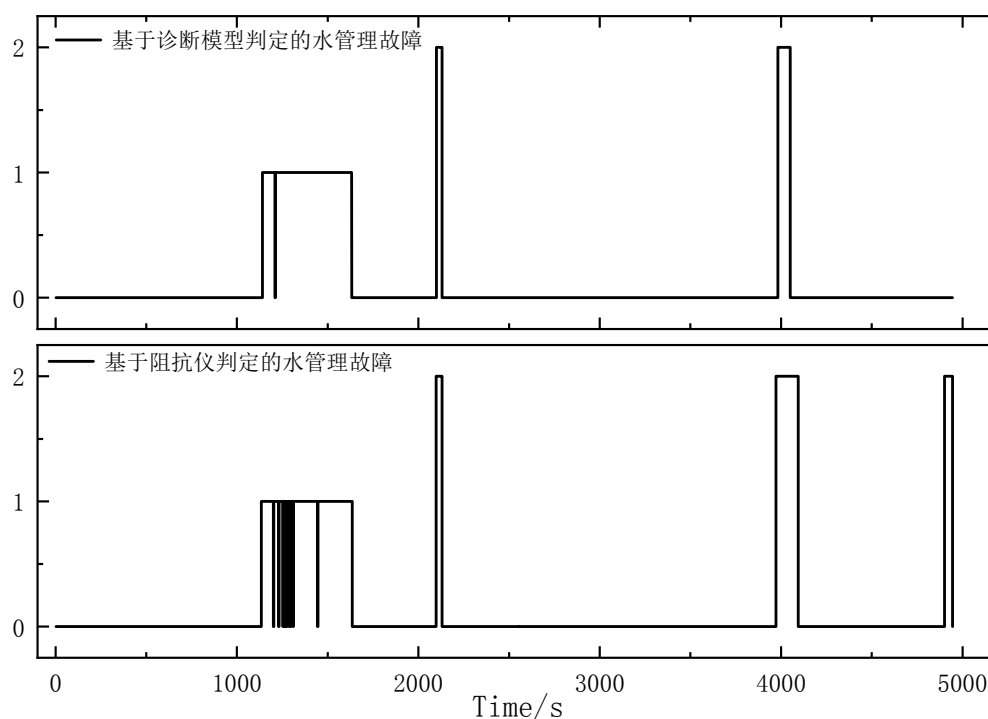


图 5.9 燃料电池系统诊断结果对比

Fig.5.9 Comparison of diagnostic results of fuel cell system

5.7 燃料电池在线恢复方法

为了延长燃料电池的使用寿命，应在诊断出水淹膜干故障后，实施对应的恢复策略修正燃料电池的内部状态，从实验数据中可知，温度、空气流量对于燃料电池的内部状态影响最大，提高温度或者提高空气流量会降低燃料电池的内部湿度，降低温度或者降低空气流量则相反。基于上述现象设置恢复策略如表 5.10 所示。

表 5.10 燃料电池系统恢复策略

Table5. 10 Establishment of fuel cell system states

健康状态等级	描述	恢复模式
0	正常状态	不使用恢复策略
1	膜干状态	降低温度，当故障等级=0时5s后退出该恢复模式
2	水淹状态	增加空气流量，当故障等级=0时10s后退出该恢复模式

本章小结

本章主要展示了 LSTM 神经网络模型在燃料电池水管理故障在线诊断工作中的应用。从数据的预处理、输入参数、输出参数、LSTM 网络结构损失函数和评价函数等几个方面对 LSTM 模型进行了调整，最终得到了燃料电池水管理故障诊断方法。使用故障模拟实验得到的数据集对模型进行训练，并使用训练好的模型写入燃料电池的控制器中，运行燃料电池系统进行在线诊断。实验结果表明基于 LSTM 神经网络的诊断模型能够实现燃料电池故障诊断的作用，可以识别出历史数据中潜在的故障趋势并发出报警信号，燃料电池系统在接收到报警信号后能够及时切换至恢复模式。同时该方法可以持续收集故障数据完善故障诊断模型，提高诊断精度。

结论

燃料电池技术是非常具有市场前景的新能源技术，在能源短缺和环境污染问题愈发严重的未来趋势下，燃料电池具备了非常广阔的发展前景。但是现阶段，相比其他类型的新能源技术，燃料电池是缺乏优势的，其耐久性和可靠性严重制约了它的发展。针对该问题，采取剩余使用寿命预测和故障诊断策略能够及时的识别寿命衰减及故障影响因素并采取恢复措施。因此，燃料电池的耐久性、使用可靠性能够有效的得到提高。本文基于深度学习技术，设计并验证了 LSTM 神经网络在离线剩余使用寿命预测以及在线诊断技术上的应用。本文的主要工作和研究内容如下：

1、通过文献调研，本文首先对国内外燃料电池寿命预测及故障诊断方法进行了总结。目前燃料电池的寿命预测和故障诊断策略主要的实施方法都可以分为基于机理模型的方法、基于数据驱动的方法以及混合方法。由于数据驱动方法不需要对燃料电池的内部状态了解清楚，能够挖掘隐藏在数据中的特征，在大数据时代非常具有优势，本文选择数据驱动方法进行预测和诊断工作。为了更好的建立预测和诊断策略，对燃料电池的故障及衰减机理进行了总结。通过分析不同模式下的燃料电池机理，对于输入层、输出层参数的选择以及诊断恢复策略的建立起到了重要的作用。

2、燃料电池性能、寿命的影响因素具有随机性，并且具有可恢复性，因此容易受到异常因素的干扰产生异常点影响测试结果，燃料电池的历史运行数据对于燃料电池的状态也有着较强的影响。针对燃料电池的这种特性，本文基于能够深入挖掘数据特征的堆叠式 LSTM 神经网络模型，设计了一种燃料电池离线寿命预测方法。使用以下方法作为创新点改进预测模型来适应燃料电池的特性：对于数据的预处理步骤，采用 LOESS 方法对数据进行平滑处理来消除电压曲线的噪声和异常尖峰。对于模型的优化，采用主成分分析方法优化输入参数，增加注意力机制突出预测模型中的重要影响向量，提升预测精度和预测能力。最后利用贝叶斯优化算法优化模型的结构和参数，避免了依靠经验人工调参容易产生的偏差，提高了模型的自适应能力，进一步提高了模型的性能。

3、在使用改进的 LSTM 混合模型成功实现长短期寿命预测的基础上，由于燃料电池的寿命预测和故障诊断有极大的相似处，因此本文基于 LSTM 模型，开发了一种用于燃料电池水管理故障的在线诊断和恢复方法然后使用模拟故障测试得到的数据集进行训练，并将训练好的模型库写入到控制系统中，使用实时运行工况在线诊断燃料电池故障，结果证明该模型能够对训练集进行很好的拟合，对燃料电池潜在的故障能够实现较准确的诊断。

燃料电池寿命预测与故障诊断功能的实现，对于燃料电池的维护与改善有着重要的作用，基于燃料电池的寿命预测和故障诊断功能，燃料电池的可靠性和耐久性能够得到极大的提高，为燃料电池的批量化、商业化打下了坚实的基础。但是本文的模型仍有一定的弊端，这是由于数据集较少导致的，可能会出现在一些工况下拟合效果较差的可能性，因此未来会对燃料电池进行更多的寿命测试及故障模拟测试，以提高模型的准确率和鲁棒性为目标，最终实现寿命预测和故障诊断功能的普适性。并且应该建立燃料电池系统自适应模型，利用当前比较流行的车端-云端通讯技术，利用上载的实车测试数据定期更新模型，提高模型的精度和自适应能力。并且在后续的研究中，对燃料电池的活化过程和可逆恢复特性进行建模，进一步提高模型的适应性。

参考文献

- [1] 新华社. 中华人民共和国国民经济和社会发展第十四个五年规划和 2035 年远景目标纲要[J]. 2021.11.15. http://www.gov.cn/xinwen/2021/03/13/content_5592681.html.
- [2] 陈全世, 仇斌, 谢起成. 燃料电池电动汽车[M]. 清华大学出版社有限公司, 2005.
- [3] Zaccaria V, Tucker D, Traverso A. Operating strategies to minimize degradation in fuel cell gas turbine hybrids [J]. *Applied energy*, 2017, 192: 437-445.
- [4] Jung G B, Chuang K Y, Jao T C, et al. Study of high voltage applied to the membrane electrode assemblies of proton exchange membrane fuel cells as an accelerated degradation technique[J]. *Applied energy*, 2012, 100: 81-86.
- [5] Zhang T, Wang P, Chen H, et al. A review of automotive proton exchange membrane fuel cell degradation under start-stop operating condition[J]. *Applied energy*, 2018, 223: 249-262.
- [6] Pei P, Chen H. Main factors affecting the lifetime of Proton Exchange Membrane fuel cells in vehicle applications: A review[J]. *Applied Energy*, 2014, 125: 60-75.
- [7] Babu S K, Spornjak D, Dillet J, et al. Spatially resolved degradation during startup and shutdown in polymer electrolyte membrane fuel cell operation[J]. *Applied Energy*, 2019, 254: 113659.
- [8] Garcia-Sanchez D, Morawietz T, da Rocha P G, et al. Local impact of load cycling on degradation in polymer electrolyte fuel cells[J]. *Applied Energy*, 2020, 259: 114210.
- [9] Chen K, Laghrouche S, Djerdir A. Degradation model of proton exchange membrane fuel cell based on a novel hybrid method[J]. *Applied Energy*, 2019, 252: 113439.
- [10] Benmouna A, Becherif M, Depernet D, et al. Fault diagnosis methods for proton exchange membrane fuel cell system[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(2): 1534-1543.
- [11] Wang J, Yang B, Zeng C, et al. Recent advances and summarization of fault diagnosis techniques for proton exchange membrane fuel cell systems: A critical overview[J]. *Journal of Power Sources*, 2021, 500: 229932.
- [12] Lu H, Chen J, Yan C, et al. On-line fault diagnosis for proton exchange membrane fuel cells based on a fast electrochemical impedance spectroscopy measurement[J]. *Journal of Power Sources*, 2019, 430: 233-243.
- [13] Darowicki K, Janicka E, Mielniczek M, et al. Implementation of DEIS for reliable fault monitoring and detection in PEMFC single cells and stacks[J]. *Electrochimica acta*, 2018, 292: 383-389.
- [14] Mitzel J, Sanchez - Monreal J, Garcia - Sanchez D, et al. Fault diagnostics in PEMFC stacks by evaluation of local performance and cell impedance analysis[J]. *Fuel Cells*, 2020, 20(4): 403-412.
- [15] Won J, Oh H, Hong J, et al. Hybrid diagnosis method for initial faults of air supply systems in proton exchange membrane fuel cells[J]. *Renewable Energy*, 2021, 180: 343-352.
- [16] Li Z, 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]//2014 IEEE/ASME International Conference on Advanced Intelligent Mechatronics. IEEE, 2014: 1628-1633.
- [17] Li Z, Giurgea S, Outbib R, et al. Fault detection and isolation of PEMFC systems: a classification approach[C]//Conference Internationale Discussion on Hydrogen Energy and Applications. 2014.

- [18] Zhou S, Dhupia J S. RETRACTED: Online adaptive water management fault diagnosis of PEMFC based on orthogonal linear discriminant analysis and relevance vector machine[J]. 2020:7005-7014.
- [19] Liu J, Li Q, Chen W, et al. A fast fault diagnosis method of the PEMFC system based on extreme learning machine and Dempster-Shafer evidence theory[J]. IEEE Transactions on Transportation Electrification, 2018, 5(1): 271-284.
- [20] Pei M, Zhang C, Hu M, et al. A Fuzzy Logic-based Method for Proton Exchange Membrane Fuel Cell Fault Diagnosis[C]//2020 International Conference on Sensing, Measurement & Data Analytics in the era of Artificial Intelligence (ICSMD). IEEE, 2020: 1-6.
- [21] Li Z, Outbib R, Giurgea S, et al. Fault diagnosis for fuel cell systems: A data-driven approach using high-precise voltage sensors[J]. Renewable Energy, 2019, 135: 1435-1444.
- [22] Zhao X, Xu L, Li J, et al. Faults diagnosis for PEM fuel cell system based on multi-sensor signals and principle component analysis method[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(29): 18524-18531.
- [23] Ifrek L, Rosini S, Cauffet G, et al. Fault detection for polymer electrolyte membrane fuel cell stack by external magnetic field[J]. Electrochimica acta, 2019, 313: 141-150.
- [24] Lee Y H, Kim J, Yoo S. On-line and real-time diagnosis method for proton membrane fuel cell (PEMFC) stack by the superposition principle[J]. Journal of Power Sources, 2016, 326: 264-269.
- [25] Mohammadi A, Chabane D, Cirrincione G, et al. Effect of the temperature distribution on the performance of PEMFC stacks for fault diagnosis[C]//2018 21st International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS). IEEE, 2018: 1019-1023.
- [26] Chen K, Laghrouche S, Djerdir A. Degradation model of proton exchange membrane fuel cell based on a novel hybrid method[J]. Applied Energy, 2019, 252: 113439.
- [27] Jouin M, Gouriveau R, Hissel D, et al. Degradations analysis and aging modeling for health assessment and prognostics of PEMFC[J]. Reliability Engineering & System Safety, 2016, 148: 78-95.
- [28] Jouin M, Gouriveau R, Hissel D, et al. Prognostics of PEM fuel cell in a particle filtering framework[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2014, 39(1): 481-494.
- [29] Bressel M, Hilairat M, Hissel D, et al. Extended Kalman filter for prognostic of proton exchange membrane fuel cell[J]. Applied Energy, 2016, 164: 220-227.
- [30] Zhou D, Wu Y, Gao F, et al. Degradation prediction of PEM fuel cell stack based on multiphysical aging model with particle filter approach[J]. IEEE Transactions on Industry Applications, 2017, 53(4): 4041-4052.
- [31] Jouin M, Gouriveau R, Hissel D, et al. Joint particle filters prognostics for proton exchange membrane fuel cell power prediction at constant current solicitation[J]. IEEE Transactions on reliability, 2015, 65(1): 336-349.
- [32] Zhu L, Chen J. Prognostics of PEM fuel cells based on Gaussian process state space models[J]. Energy, 2018, 149: 63-73.
- [33] Morando S, Jemei S, Hissel D, et al. Proton exchange membrane fuel cell ageing forecasting algorithm based on Echo State Network[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(2): 1472-1480.
- [34] Li Z, Zheng Z, Outbib R. Adaptive prognostic of fuel cells by implementing ensemble echo state networks in time-varying model space[J]. IEEE Transactions on Industrial Electronics, 2019, 67(1): 379-389.

- [35] Zhou D, Al-Durra A, Zhang K, et al. Online remaining useful lifetime prediction of proton exchange membrane fuel cells using a novel robust methodology[J]. Journal of Power Sources, 2018, 399: 314-328.
- [36] Liu H, Chen J, Hou M, et al. Data-based short-term prognostics for proton exchange membrane fuel cells[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(32): 20791-20808.
- [37] Liu J, Li Q, Chen W, et al. Remaining useful life prediction of PEMFC based on long short-term memory recurrent neural networks[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2019, 44(11): 5470-5480.
- [38] Ma R, Yang T, Breaz E, et al. Data-driven proton exchange membrane fuel cell degradation predication through deep learning method[J]. Applied energy, 2018, 231: 102-115.
- [39] Hua Z, Zheng Z, Péra M C, et al. Remaining useful life prediction of PEMFC systems based on the multi-input echo state network[J]. Applied Energy, 2020, 265: 114791.
- [40] Hua Z, Zheng Z, Péra M C, et al. Data-driven prognostics for PEMFC systems by different echo state network prediction structures[C]//2020 IEEE Transportation Electrification Conference & Expo (ITEC). IEEE, 2020: 495-500.
- [41] Zuo J, Lv H, Zhou D, et al. Deep learning based prognostic framework towards proton exchange membrane fuel cell for automotive application[J]. Applied Energy, 2021, 281: 115937.
- [42] Wang F K, Mamo T, Cheng X B. Bi-directional long short-term memory recurrent neural network with attention for stack voltage degradation from proton exchange membrane fuel cells[J]. Journal of Power Sources, 2020, 461: 228170.
- [43] Li H W, Xu B S, Du C H, et al. Performance prediction and power density maximization of a proton exchange membrane fuel cell based on deep belief network[J]. Journal of Power Sources, 2020, 461: 228154.
- [44] Ren P, Pei P, Li Y, et al. Degradation mechanisms of proton exchange membrane fuel cell under typical automotive operating conditions[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2020, 80: 100859.
- [45] Tsushima S, Hirai S. In situ diagnostics for water transport in proton exchange membrane fuel cells[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2011, 37(2): 204-220.
- [46] Kim S, Mench M M. Investigation of temperature-driven water transport in polymer electrolyte fuel cell: Thermo-osmosis in membranes[J]. Journal of Membrane Science, 2009, 328(1-2): 113-120.
- [47] Céspedes C G, Asteazaran M, Castro Luna Berenguer AMDC. Effect of water content in the gas diffusion layer of H₂/O₂ PEM fuel cell[J]. Journal of Materials Science and Engineering A, 2016.
- [48] Villaluenga J P G, Seoane B, Barragán V M, et al. Thermo-osmosis of mixtures of water and methanol through a Nafion membrane[J]. Journal of Membrane science, 2006, 274(1-2): 116-122.
- [49] Zaffou R, Jung S Y, Kunz H R, et al. Temperature-driven water transport through membrane electrode assembly of proton exchange membrane fuel cells[J]. Electrochemical and Solid-State Letters, 2006, 9(9): A418.
- [50] Zhou J, Tao Y L, Xu C J, et al. Electro-osmotic strengthening of silts based on selected electrode materials[J]. Soils and Foundations, 2015, 55(5): 1171-1180.
- [51] Zawodzinski T A, Davey J, Valerio J, et al. The water content dependence of electro-osmotic drag in proton-conducting polymer electrolytes[J]. Electrochimica Acta, 1995, 40(3): 297-302.
- [52] Berning T. On water transport in polymer electrolyte membranes during the passage of current[J]. International journal of hydrogen energy, 2011, 36(15): 9341-9344.

- [53] Gholizadeh M, Ghazikhani M, Khazaei I. Effect of changing the water balance on electro-osmotic flow in an elliptical single proton exchange membrane fuel cell[J]. *Energy Conversion and Management*, 2016, 120: 44-50.
- [54] Park Y H, Caton J A. An experimental investigation of electro-osmotic drag coefficients in a polymer electrolyte membrane fuel cell[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2008, 33(24): 7513-7520.
- [55] Xu F, Leclerc S, Stemmelen D, et al. Study of electro-osmotic drag coefficients in Nafion membrane in acid, sodium and potassium forms by electrophoresis NMR[J]. *Journal of membrane science*, 2017, 536: 116-122.
- [56] Luo Z, Chang Z, Zhang Y, et al. Electro-osmotic drag coefficient and proton conductivity in Nafion® membrane for PEMFC[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2010, 35(7): 3120-3124.
- [57] Springer T E, Zawodzinski T A, Gottesfeld S. Polymer electrolyte fuel cell model[J]. *Journal of the electrochemical society*, 1991, 138(8): 2334.
- [58] Kong I M, Jung A, Kim Y S, et al. Numerical investigation on double gas diffusion backing layer functionalized on water removal in a proton exchange membrane fuel cell[J]. *Energy*, 2017, 120: 478-487.
- [59] Zhao Q, Majsztrik P, Benziger J. Diffusion and interfacial transport of water in Nafion[J]. *The journal of physical chemistry B*, 2011, 115(12): 2717-2727.
- [60] Majsztrik P, Bocarsly A, Benziger J. Water permeation through Nafion membranes: the role of water activity[J]. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2008, 112(51): 16280-16289.
- [61] Belkhir Z, Moussa H B, Haddad D, et al. Effect of permeability on the dynamic field in the PEM fuel cell[J]. *international journal of hydrogen energy*, 2015, 40(39): 13789-13798.
- [62] Tamayol A, Bahrami M. Water permeation through gas diffusion layers of proton exchange membrane fuel cells[J]. *Journal of power sources*, 2011, 196(15): 6356-6361.
- [63] 杨朵. 燃料电池空气供给系统控制与故障诊断策略研究[D]. 中国科学技术大学, 2021.
- [64] Gouriveau R, Hilairet M, Hissel D, et al. IEEE PHM 2014 Data Challenge-Details for participants, 2014.
- [65] Hochreiter S, Bengio Y, Frasconi P, et al. Gradient flow in recurrent nets: the difficulty of learning long-term dependencies[J]. 2001.
- [66] Gers F A, Schmidhuber J, Cummins F. Learning to forget: Continual prediction with LSTM[J]. *Neural computation*, 2000, 12(10): 2451-2471.
- [67] Mnih V, Heess N, Graves A, et al. Recurrent models of visual attention[C]. *Advances in Neural Information Processing Systems*. 2014, 27: 2204-2212.
- [68] Bergstra J, Bengio Y. Random search for hyper-parameter optimization[J]. *Journal of machine learning research*, 2012, 13(2).
- [69] 崔佳旭, 杨博. 贝叶斯优化方法和应用综述[J]. *软件学报*, 2018, 29(10): 3068-3090.
- [70] Holland J H. *Adaptation in natural and artificial systems: an introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence*[M]. MIT press, 1992.
- [71] Kennedy J, Eberhart R. Particle swarm optimization[C]//*Proceedings of ICNN'95-international conference on neural networks*. IEEE, 1995, 4: 1942-1948.
- [72] Nair V, Hinton G E. Rectified linear units improve restricted boltzmann machines[C]. *Proceedings of the International Conference on Machine Learning*, 2010.

- [73] Kingma D, Ba J Adam: A method for stochastic optimization[C]. Proceedings of International Conference on Learning Representations, 2015.
- [74] Srivastava N, Hinton G, Krizhevsky A, et al. Dropout: a simple way to prevent neural networks from overfitting[J]. The journal of machine learning research, 2014, 15(1): 1929-1958.
- [75]李笑雪,蒋澄杰,马册,安津石,et al.基于注意力机制和长短期记忆神经网络的流量预测研究[J]. 电脑与信息技术,2022,30(01):14-16,20.
- [76]洪坡. 车用燃料电池电堆与单片水含量状态估计与控制研究[D].清华大学,2018.