电 池 BATTERY BIMONTHLY Vol. 51, No. 3 Jun. ,2021



• 科研论文 •

DOI: 10. 19535/j. 1001-1579. 2021. 03. 001

基于循环工况的燃料电池堆电压一致性评价

侯永平¹,陈 锴^{1*},兰 昊²

(1. 同济大学汽车学院,上海 201804; 2. 中国汽车技术研究中心有限公司,天津 300300)

摘要:基于车用动态循环工况,对车用燃料电池堆进行1044h耐久性实验。基于实验数据,从电流和运行时间两个方面进行燃料电池堆电压一致性研究,发现电压一致性随电流的增加和运行时间的延长而变差。在此基础上,提出一种改进的单体电池电压一致性评价方法,指标包括:电压最大偏差率、单体电压波动率和单体电压异众比率。在改进的评价方法中,综合考虑3个指标来评价单体电池电压的一致性,避免单一指标的片面性。该方法能客观地评价电压一致性,具有广泛的适用性。

关键词: 质子交换膜燃料电池(PEMFC); 燃料电池堆; 电压一致性; 评价方法

中图分类号: TM911.42 文献标志码: A 文章编号: 1001-1579(2021)03-0216-05

Evaluation of voltage uniformity of PEMFC stack based on cycle condition

HOU Yong-ping¹, CHEN Kai^{1*}, LAN Hao²

(1. School of Automotive Studies, Tongji University, Shanghai 201804, China;

2. China Automotive Technology & Research Center Co., Ltd., Tianjin 300300, China)

Abstract: Based on the dynamic cycle condition for vehicle, a 1 044 h durability test was carried out on a vehicle fuel cell stack. Based on the test data, voltage uniformity of the stack was studied from two aspects: current and operating time. It was found that voltage uniformity became worse with the increasing of current and prolonging of operating time. On this basis, an improved evaluation method of voltage uniformity was proposed; the indicators included maximum deviation rate of voltage, single voltage fluctuation rate and single voltage variation rate. In the improved evaluation method, three indicators were comprehensively considered to evaluate voltage uniformity, which could avoid one-sideness of a single indicator. This method could objectively evaluate voltage uniformity and was of extensive applicability.

Key words: proton exchange membrane fuel cell(PEMFC); fuel cell stack; voltage uniformity; evaluation method

质子交换膜燃料电池(PEMFC)具有高能量转化效率、零排放及高能量密度等优点,是极具潜力的车用动力装置。电池堆的耐久性是限制车用燃料电池广泛商业化的主要原因之一[1-3]。PEMFC 堆由多片单体电池串联而成,单体电池电压的不一致会直接影响整个电池堆的性能。在车用动态工况下,随着电池堆使用时间的延长,单体电池电压的不一致性将逐步严重,甚至出现反极现象。电池堆的运行寿命取决于性能最差的单体电池,存在"木桶效应"。开展燃料电池堆电压一致性的研究,对于改善性能和延长寿命是非常必要的。

刘亚楠等[4] 研究某固定电站用燃料电池系统在恒负载

下的性能衰減,发现燃料电池堆运行 150 h 后的电压一致性下降。Y. K. Li 等^[5] 研究燃料电池堆在动态变载过程中电压一致性的变化,发现电压一致性随着电流阶跃幅值、频率的增大而变差。陈维荣等^[6] 研究 14.4 kW 燃料电池堆在稳态和暂态下的电压一致性,提出一种电压一致性的评价方法。P. C. Liu 等^[7] 研究 3 kW 燃料电池堆从开路到额定电流状态过程中,在不同动态加载策略下的电压一致性,发现电压一致性在采用平方递增加载时比在恒速率加载和递减速率加载时好。P. Moçotéguy 等^[8] 对高温 PEMFC 进行 650 h 的寿命测试,发现单体电池电压一致性明显恶化,主要是由于各单体

作者简介:

侯永平(1971-),男,山西人,同济大学汽车学院教授,博士生导师,研究方向:汽车实验技术、车辆系统动力学等;

陈 锴(1995-), 男, 贵州人, 同济大学汽车学院硕士生, 研究方向: 燃料电池电动汽车试验技术, 通信作者;

兰 昊(1989-),男,天津人,中国汽车技术研究中心有限公司工程师,硕士,研究方向:燃料电池电动汽车标准与测试。基金项目:国家重点研发计划(2018YFE0105400)

电池所处的环境不同,导致性能衰减程度不同。

目前,相关研究主要集中于燃料电池堆在恒负载或简单 动态工况下,电压一致性的实验测试,缺乏燃料电池堆在车 用动态工况下衰减时,电压一致性变化规律的研究。本文作 者通过车用燃料电池堆在动态循环工况下的台架实验数据, 对电压一致性的变化规律进行分析和总结,对现有燃料电池 堆电压一致性评价方法的不足进行分析,提出改进的电压一 致性评价方法,并通过实验数据验证该方法的有效性。

1 燃料电池堆耐久性台架实验

实验采用 G700 台架(Green Light Innovation 公司)。PEMFC 电堆由 75 片单体电池串联组成,参数见表 1。气体出入口一侧的单体电池定义为 1 号,其余单体电池编号依次增加。

表 1 燃料电池堆的参数

Table 1 Parameters of the fuel cell stack

参数	数值	单位	参数	数值	单位
额定功率	6. 55	kW	长度	357	mm
额定电流	135	A	宽度	490	mm
活化面积	200	cm^2	高度	180	mm
额定电流密度	675	mA/cm^2	单体电池数量	75	

根据新欧洲循环测试(NEDC)的特点和实际车辆行驶情况,将NEDC循环转化为适用于车用燃料电池堆耐久性台架实验的循环工况^[9]。该循环工况包含怠速、加速、减速和匀速等日常车用工况及额定工况的特征功率点。

在耐久性循环工况实验中,一次循环为 20 min。实验完成 3 134 次循环工况,燃料电池堆共运行 1 044 h(最后一次极化曲线测试在 1 044 h处)。每 60 次循环进行一次极化曲线测试,记录各单体电池的电压,共51 条极化曲线,如图 1 所示。

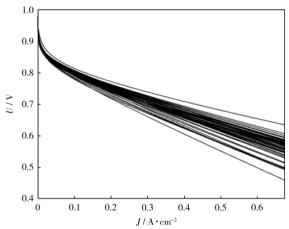


图 1 燃料电池堆的极化曲线

Fig. 1 Polarization curves of fuel cell stack

从图 1 可知,随实验时间的延长,极化曲线不断向下(低电压方向)移动,说明燃料电池堆的性能逐渐衰减。

2 电压一致性与电流和运行时间的关系

目前,常用图形法和单体电压波动率 C_v 来体现燃料电池堆的电压一致性。图形法将单体电池的电压制成折线图,

横、纵坐标分别为电池编号和电压。 C_v 是单体电池电压标准偏差与平均值之比,计算公式见式(1)。

$$C_{v} = \frac{\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (U_{i} - \overline{U})^{2}}}{\overline{U}} \times 100\%$$
 (1)

式(1)中: U_i 为各单体电池的电压;N为燃料电池堆中单体电池的数量; \overline{U} 为单体电池电压的平均值。

 C_v 越大,燃料电池堆中单体电池电压分布越分散,电压一致性越差。燃料电池堆 C_v 的变化情况见图 2。

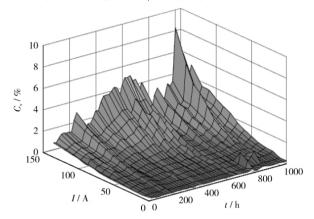


图 2 单体电压波动率的变化情况

Fig. 2 The changing condition of single voltage fluctuation rate

从图 2 可知, C_v 随电流和运行时间的变化而变化,因此电流和运行时间影响电压的一致性。有鉴于此,实验从电流和运行时间两方面,分析单体电池电压的一致性。

2.1 电流的影响

在 $0 \text{ h} \cdot 360 \text{ h} \cdot 746 \text{ h}$ 和 1 044 h 时,不同电流下单体电池的电压分布情况见表 2。

表 2 不同运行时间时单体电池在不同电流下的电压分布
Table 2 Voltage distribution of single cell under different currents at different operating time

			1 0				
时间/	取值	不同电流下单体电池的电压/V					
h	情况	0 A	20 A	60 A	100 A	135 A	
	最小值	0. 961	0.807	0. 729	0. 648	0. 598	
0	最大值	0. 976	0.821	0.748	0.694	0.645	
	平均值	0. 967	0.813	0.739	0. 682	0.627	
	最小值	0. 958	0. 794	0. 708	0. 614	0. 489	
360	最大值	0. 969	0.801	0.726	0.664	0.601	
	平均值	0.965	0. 797	0.718	0.643	0.556	
	最小值	0. 955	0. 786	0. 701	0. 618	0. 526	
746	最大值	0.966	0. 794	0.717	0.648	0.576	
	平均值	0.962	0.790	0.708	0. 632	0. 555	
	最小值	0. 958	0. 747	0. 653	0. 508	0. 369	
1 044	最大值	0. 972	0.779	0.690	0. 594	0.508	
	平均值	0. 967	0.768	0. 671	0. 554	0. 444	

从表 2 可知,在开路时,单体电池电压较高,分布较均衡,最大值和最小值相近。随着放电电流的增加,单体电池电压逐渐降低,分布出现明显波动。这是由燃料电池的极化特性决定的。燃料电池的极化损失包含:活化损失、欧姆损

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

 电 BATTERY BIMONTHLY
第51卷

失和质量传输损失。随着燃料电池堆电流的增大,欧姆损失和质量传输损失都将增大,单体电池电压有所下降。在额定电流下,单体电池电压低,分布离散程度大。

在 0 h、360 h、746 h 和 1 044 h 时, C_v 与电流的关系如图 3 所示。

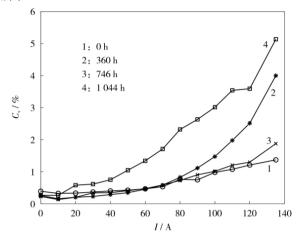


图 3 单体电压波动率与电流的关系

Fig. 3 Relation between single voltage fluctuation rate and current

从图 3 可知,电流不高于 40 A 时, C_v 较低且随放电电流的增大没有明显变化,电压一致性较好。随着电流的进一步增大, C_v 显著增大。在额定电流 135 A 下, C_v 分别达到 1.37%、4.00%、1.88%和 5.14%,电压一致性较开路时恶化严重。这主要是由于在中高电流区间,燃料电池堆内部的气体传质不均匀,生成水的质量传输过程复杂且不稳定,温度分布不均匀,导致单体电池之间的性能差异较大,从而影响燃料电池堆的电压一致性。

2.2 运行时间的影响

燃料电池堆电流分别为 20 A、60 A、100 A 和 135 A 时,单体电池电压分布随运行时间的变化见表 3。

表 3 不同电流下单体电池电压分布随运行时间的变化

 Table 3
 Variation of single cell voltage distribution with operating time under different currents

电流/	电流/ 取值	不同运行时间时单体电池的电压/V					
A	情况	0 h	156 h	540 h	903 h	1 044 h	
	最小值	0.807	0.789	0. 782	0.737	0. 747	
20	最大值	0. 821	0.801	0. 794	0.783	0.779	
	平均值	0.813	0. 795	0.790	0.774	0. 768	
	最小值	0. 729	0. 692	0. 693	0.663	0. 653	
60	最大值	0. 748	0.716	0.717	0.689	0.690	
	平均值	0. 739	0.705	0.706	0.676	0. 671	
	最小值	0. 648	0. 597	0. 543	0. 546	0. 508	
100	最大值	0. 694	0.648	0.640	0.606	0. 594	
	平均值	0. 682	0.625	0.612	0. 576	0. 554	
	最小值	0. 598	0.490	0. 367	0. 421	0. 369	
135	最大值	0.645	0.568	0.569	0. 526	0. 508	
	平均值	0. 627	0. 536	0.512	0. 481	0. 444	

从表 3 可知,实验开始时,单体电池电压相近。随着运行时间的增加,单体电池性能衰减,电压分布波动增大,电压一致性变差。到实验后期,单体电池间的电压差异进一步增大,出现少数电压极低的单体,电压一致性较实验开始时恶化严重。电流为 135 A,运行时间为 540 h 和 1 044 h 时,性能最好和最差的单体电池电压差距分别达到 0. 202 V 和 0. 139 V。

不同电流下, C_v 随运行时间的变化见图 4。

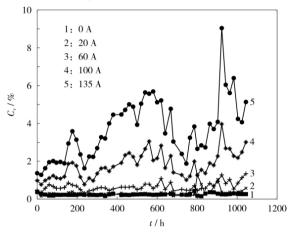


图 4 单体电压波动率与运行时间的关系

Fig. 4 Relation between single voltage fluctuation rate and operating time

从图 4 可知,在电流为 0 A 和 20 A 时, C_v 随运行时间的延长没有明显变化,始终低于 1%,电压一致性较好。在电流为 60 A 和 100 A 时, C_v 在实验前中期缓慢波动上升,在后期显著上升。在电流为 135 A 时, C_v 随运行时间的延长而快速增大,在实验后期 923 h 时超过 9%。

3 电压一致性评价方法的改进

3.1 现有电压一致性评价方法的缺陷

分析燃料电池堆的电压—致性时,图形法能直观地反映单体电池电压的波动。每当额外加入一个影响单体电池性能的因素时,图的数目会显著增加,或在坐标上增加一个维度,因此图形法不适用于多因素下电压—致性的分析。在不借助其他评价指标时,图形法很难定量分析电压—致性。

单体电压波动幅值 ΔU 和单体电压均方根值 σ_x 常用于燃料电池堆电压一致性的评价。单体电压波动幅值是单体电池电压的极差,计算公式见式(2),反映电压波动范围的大小。单体电压均方根值是单体电池电压的标准偏差,计算公式见式(3),反映电压的离散程度。

$$\Delta U = U_{\text{max}} - U_{\text{min}} \tag{2}$$

$$\sigma_x = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (U_i - \overline{U})^2}$$
 (3)

式(2) 中: U_{max} 、 U_{min} 分别为燃料电池堆中单体电池电压的最大值和最小值。

 ΔU 和 σ_x 越大,燃料电池堆的电压一致性越差。当两组数据的测量范围太大或数据量纲不同时,直接使用极差和标准偏差来进行比较是不合适的,因此, ΔU 和 σ_x 不适用于对

比分析不同燃料电池堆或同一燃料电池堆不同电流和衰减 过程时的电压一致性。

 C_v 是单体电池电压的变异系数,是 σ_x 与 \overline{U} 的比值,反映单体电池电压的离散程度。 C_v 是一个无量纲的评价指标,弥补了 σ_x 的不足;但仅能反映单体电池电压的平均离散程度,很难包含单体电池电压波动的全部信息。图 5 所示为相同 C_v 下的单体电池电压分布。

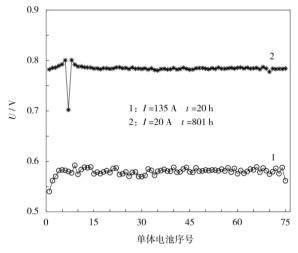


图 5 相同单体电压波动率下的单体电池电压分布 Fig. 5 Single cell voltage distribution at the same single voltage

图 5 中,两种电堆状况下的 C_v 均为 1.28%,但后者的波动率几乎由 7 号单体电池单独导致,其余单体电池电压分布紧密,而前者各单体电池电压分布均相对离散。这表明,仅从 C_v 的大小来判断燃料电池堆电压一致性,是不充分的。

3.2 电压一致性评价方法的改进

3.2.1 电压最大偏差率(D_v)

fluctuation rate

因为燃料电池堆的运行寿命取决于性能最差的单体电池,所以有必要对单体电池电压的最小值偏离平均值的程度进行监测。定义电堆单体电池电压的平均值与最小值的相对差为电压最大偏差率(D_v),计算公式见式(4)。

$$D_{v} = \frac{\overline{U} - U_{\min}}{\overline{U}} \times 100\% \tag{4}$$

 D_{v} 越大,单体电池电压的波动范围越大,电压一致性越差。若 D_{v} 过大,则有极低单体电压出现,甚至会出现反极。

相比于 $\Delta U, D_v$ 中包含了性能较差的单体电池的信息,而这对燃料电池堆运行寿命更重要。式(4)的分子为单体电池电压的平均值与最小值之差,而不是单体电池电压的最大值与最小值之差,可避免由于最高单体电池电压波动带来的极大值影响,更有利于电压一致性的评价。 D_v 是一个无量纲的评价指标,可用于不同燃料电池堆或同一燃料电池堆不同电流和衰减过程时的电压一致性对比。

3.2.2 单体电压异众比率(R_v)

在统计学中,异众比率定义为总体中非众数次数与总体 全部次数之比,是一个反映离散程度的相对指标,常用于度 量数据的离散程度。将该指标应用于燃料电池堆单体电压 一致性评价中,定义电压在 $[U_{\min}, U_{\min}+0.75D_{v} \cdot \overline{U}]$ 以内的单体电池为非众数,数量为 n,则 R_{v} 定义为该类单体电池数量占燃料电池堆单体电池总数量的百分比,计算公式见式(5)。

$$R_{\rm v} = \frac{n}{N} \times 100\% \tag{5}$$

系数取 0.75 可防止公式用于单体电池数量较少的燃料电池堆时, R. 不能灵敏地反映单体电池电压分布的变化。

 R_v 是一个无量纲的评价指标,能反映单体电池电压的分布情况。当 R_v 较低时,单体电压波动由少数偏差较大、电压较低的单体电池导致,应对它们给予更多的关注,避免出现反极或失效。当 R_v 较高时,表明可能有较多单体电池的电压偏差明显。

3.3 改进方法的电压一致性分析

燃料电池堆单体电池的电压最大偏差率 D, 变化见图 6。

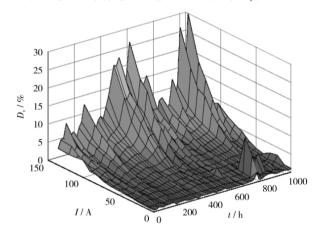


图 6 单体电池的电压最大偏差率

Fig. 6 Maximum deviation rate of voltage of single cell

从图 6 可知,在中小电流区间, D_v 低于 5%,随运行时间的增加无明显变化,说明单体电池电压的分布范围小,电压一致性较好。随着电流的增加, D_v 变大。在额定电流 135 A下, D_v 随运行时间延长而迅速增大。在 400~600 h 和 900~1 000 h时, D_v 超过 20%,说明单体电池电压分布范围很大,可能出现性能很差的单体电池,电压一致性恶化严重。

燃料电池堆单体电池的电压异众比率 R, 变化见图 7。

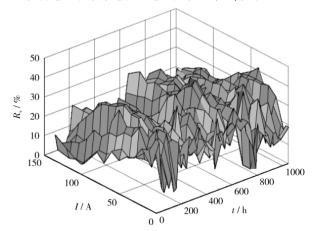


图 7 单体电池的电压异众比率

Fig. 7 Voltage variation rate of single cell

从图 7 可知,在电流低于 50 A 时, R_v 高于 30%,且随运行时间的延长无明显变化,说明单体电池电压分布较为均衡,电压一致性较好。随着电流的增加, R_v 变小,说明燃料电池堆中的电压分布出现较为明显的分级现象。在额定电流135 A下, R_v 随运行时间延长而增大,说明燃料电池堆的电压分布由实验前期少量单体电池电压较低,变为后期较多单体电池电压偏差均较大,电压一致性变差。

采用图 5 中两个不同电流和不同时刻下的电堆状况,对 改进的燃料电池堆电压一致性评价方法进行验证。

图 5 中,当电流为 135 A 和运行时间为 20 h 时,燃料电池堆单体电池电压的 D_v 为 6.83%, C_v 为 1.28%, R_v 为 5.33%; 当电流为 20 A 和运行时间为 801 h 时,燃料电池堆单体电池电压的 D_v 为 10.41%, C_v 为 1.28%, R_v 为 1.33%。从 D_v 看,20 A、801 h 时的单体电压波动范围更大,可能存在电压较低的单体电池; 从 C_v 看,两者单体电压的平均偏差近似; 从 R_v 看,20 A、801 h 时的值很小,则存在极个别电压偏差较大的单体电池。

综合 3 个评价指标,两者单体电池电压分布的平均波动相同,但 20 A、801 h 时的单体电压波动范围更大,且主要是由极少数偏差较大的低压单体导致,而 135 A、20 h 时的电压间偏差较为均衡。这表明,燃料电池堆在 135 A、20 h 时的电压一致性更好。

评价方法所得结果符合图 5 中的单体电池电压分布状态,因此改进后的评价方法能客观、全面地反映燃料电池堆的电压一致性情况。

4 结论

本文作者对燃料电池堆进行了 1 044 h 的耐久性实验,进行 51 次极化曲线测试并记录单体电池电压数据,分析燃料电池堆电压一致性的影响因素,并提出一种改进的燃料电池堆电压一致性评价方法。得到如下结论:

电压一致性与燃料电池堆的电流、运行时间有关。随着电流的增加,单体电压波动率变大,燃料电池堆的电压一致性变差。在电流低于40 A时,单体电压波动率随运行时间延长的变化不明显。在中大电流下,单体电压波动率随运行

时间的延长快速变大,在实验后期达到9%,燃料电池堆电压一致性恶化。

与单体电压波动率相比,改进的电压一致性评价方法中,评价指标包含最大偏差率、单体电压波动率和单体电压 异众比率。最大偏差率随电流的增加和运行时间的延长而 变大。单体电压异众比率随电流的增大而减小,随运行时间 的延长而变大。

该方法可用于不同燃料电池堆或同一燃料电池堆不同 电流和衰减过程时的电压一致性对比,能客观地对燃料电池 堆电压一致性进行综合评价,全面地反映燃料电池堆中单体 电池电压的分布状况,具有广泛的适用性。

参考文献:

- [1] 王诚,王树博,张剑波,等. 车用燃料电池耐久性研究[J]. 化学进展,2015,27(4):424-435.
- [2] 徐子航,唐俊安. 一种搭载燃料电池的厢式运输车开发[J]. 汽车电器,2020,(5):15-18.
- [3] 熊子昂,彭洪亮,向华,等. 水氢燃料电池控制策略[J]. 桂林 电子科技大学学报,2018,38(2):144-149.
- [4] 刘亚楠,王远远,黄刚,等.固定电站用燃料电池系统性能衰减的规律[J].电池,2013,43(4):17-20.
- [5] LI Y K,ZHAO X Q,LIU Z X, et al. Experimental study on the voltage uniformity for dynamic loading of a PEM fuel cell stack [J]. Int J Hydrogen, 2015, 40(23):7361-7369.
- [6] 陈维荣,刘嘉蔚,郭爱,等.14.4 kW PEMFC 电堆单体电压均衡 性实验研究[J]. 西南交通大学学报,2017,52(3):429-438.
- [7] LIU P C, XU S C, FU J X, et al. Experimental investigation on the voltage uniformity for a PEMFC stack with different dynamic loading strategies [J]. Int J Hydrogen, 2020, 45: 26 490-26 500.
- [8] MOÇOTÉGUY P, LUDWIG B, SCHOLTA J, et al. Long term testing in continuous mode of HT-PEMFC based H₃PO₄/PBI Celtec-P MEAs for μ-CHP applications [J]. Fuel Cells, 2009, 9(4): 325 – 348.
- [9] 侯永平,张若婧,张涛,等.循环工况研究 PEMFC 单体电池电压的一致性[J].电池,2019,49(6):463-466.

收稿日期: 2021-01-14

关于检测学术不端的公告

为了弘扬良好的学术风气,保护知识产权,防止不当署名、一稿多投及一个学术成果多篇发表等学术不端行为,中国学术期刊(光盘版)电子杂志社学术不端文献检测中心将会对本刊刊登的文章进行系统检测,并按照"《中国学术期刊网络出版总库》删除学术不端文献暂行办法"处理,敬请作者留意!也希望作者朋友与我们共同把好质量关。

特此公告!

《电池》编辑部