

На правах рукописи



ДЕНИСОВ ЕВГЕНИЙ СЕРГЕЕВИЧ

**ФЛУКТУАЦИОННО-ШУМОВЫЕ
И РЕЛАКСАЦИОННЫЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ И ПРИБОРЫ
ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОГО КОНТРОЛЯ И ДИАГНОСТИКИ
ВОДОРОДНЫХ ТВЕРДОПОЛИМЕРНЫХ ТОПЛИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ**

Специальность 2.2.8. Методы и приборы контроля и диагностики
материалов, изделий, веществ и природной среды

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
доктора технических наук

Казань 2025

Работа выполнена в ФГБОУ ВО «Казанский национальный исследовательский технический университет им. А.Н. Туполева – КАИ» (КНИТУ-КАИ) на кафедре радиоэлектроники и информационно-измерительной техники

Научный консультант: **Евдокимов Юрий Кириллович**, доктор технических наук, профессор, кафедра радиоэлектроники и информационно-измерительной техники КНИТУ-КАИ, профессор

Официальные оппоненты: **Григорьев Сергей Александрович**, доктор технических наук, доцент, ФГБОУ ВО «Национальный исследовательский университет «МЭИ», кафедра химии и электрохимической энергетики, профессор;

Пиганов Михаил Николаевич, доктор технических наук, профессор, ФГАОУ ВО «Самарский национальный исследовательский университет имени академика С.П. Королева», кафедра радиоэлектронных систем, профессор;

Славутский Леонид Анатольевич, доктор физико-математических наук, профессор, ФГБОУ ВО «Чувашский государственный университет им. И.Н. Ульянова», кафедра автоматики и управления в технических системах, профессор

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Объединенный институт высоких температур Российской академии наук, г. Москва

Защита состоится «10» октября 2025 года в 14 час. 00 мин. на заседании диссертационного совета 24.2.310.01, созданного на базе ФГБОУ ВО «Казанский государственный энергетический университет», 420066, г. Казань, ул. Красносельская, 51, ауд. Д-224; тел. (843)5194220.

Отзывы на автореферат, заверенные печатью учреждения, просим направлять по адресу: 420066, г. Казань, ул. Красносельская, 51, КГЭУ, Ученому секретарю диссертационного совета 24.2.310.01.

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке Казанского государственного энергетического университета и на официальном сайте КГЭУ: <https://kgeu.ru/struktura-vuza/dissertatsionnye-sovety/dissertatsionnyy-sovet-24-2-310-01/soiskatel-denisov-evgeniy-sergeevich/>

Автореферат разослан «___» _____ 2025 года.

Ученый секретарь
диссертационного совета, д.ф.-м.н.



Калимуллин Рустем Ирекович

1. ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования и степень ее разработанности. Согласно Концепции развития водородной энергетики в Российской Федерации, утвержденной Распоряжением Правительства РФ №2162-р от 05.08.21, водород рассматривается в качестве перспективного энергоносителя для развития низкоуглеродной экономики и снижения антропогенного влияния на климат. Активный рост водородной энергетики (ВЭ) является объективной общемировой тенденцией, что подтверждается принятием ведущими государствами стратегий и дорожных карт по ее развитию, а также формированием крупного рынка, который по оценкам достигнет 40-170 млн тонн водорода к 2050 году. Один из ключевых факторов глобального внедрения ВЭ – развитие технологий применения водородных энергоносителей, в том числе топливных элементов (ТЭ). Согласно Концепции, ТЭ относятся к технологиям, приоритетным для разработки и доведения до промышленного внедрения.

Одни из наиболее перспективных типов ТЭ для стационарных, портативных и транспортных приложений в настоящее время – твердополимерные топливные элементы (ТПТЭ) с протонообменной мембраной, перспективность которых обусловлена уникальной совокупностью характеристик: внешний накопитель водорода, низкие рабочие температуры, высокие КПД и плотность мощности, быстрый запуск и малые массогабаритные характеристики. Ограничения к их широкому внедрению – высокая стоимость и деградация катализаторов, сложное управление режимами увлажнения, недостаточные надежность и долговечность. Преодолеть указанные недостатки в настоящее время не удалось, что формирует научно-техническую проблему повышения надежности и срока безотказной работы таких элементов. Решение этой проблемы требует разработки и применения новых малогабаритных и оперативных средств контроля и диагностики. При этом под оперативностью понимается получение диагностической информации в реальном масштабе времени, когда задержка принятия решений существенно ниже характерных времен развития неисправностей и критических режимов работы, а под малыми возмущениями – воздействие на ТПТЭ, которое не приводит к его выходу за пределы линейного изменения режима работы.

Применимость классических методов диагностики ЭХИТ – вольтамперометрических, импедансных, импульсных и других может быть ограничена из-за недостаточной информативности, необходимости вывода объекта из рабочего режима или дороговизны и сложности аппаратного и программного обеспечения.

Перспективным направлением для решения таких задач является использование информационных свойств электрических шумов и флуктуаций, наблюдающихся в процессе работы объекта. Такой подход хорошо известен при исследовании дефектов и отбраковки компонентов в электронике и электротехнике. При этом во многих работах отмечается высокая информативность фликкер-шумовых составляющих. В этой области можно выделить труды ученых А. Van der Ziel, L.K.J. Vandamme, M.J. Buckingham, Ш.М. Когана, Б.М. Графова, С.Ф. Тимашева, Г.П. Жигальского, А.В. Якимова, Р.М. Юльметьева, В.С. Пряникова. Высокая эффективность шумовых

методов исследования электрохимических систем была установлена и подтверждена в работах В.А. Тягая, G.C. Barker, F. Huet, Б.М. Графова, Р.Р. Нигматуллина, С.А. Мартемьянова, А.Е. Укше и других авторов. Работы этих ученых заложили теоретические и экспериментальные основы применения электрохимических флуктуаций для исследования процессов коррозии, электроосаждения и газовой выделения.

Исследования электрических шумов ТПТЭ освещены в современной научной литературе гораздо слабее из-за сложности экспериментальных исследований, построения моделей и обработки данных вследствие малого уровня сигналов, продолжительности измерительных процедур, большого количества воздействующих факторов и разнообразия режимов работы. Существенный вклад в развитие этой области внесли С.А. Мартемьянов, Ю.К. Евдокимов, Л.С. Каневский, А.Е. Укше, Б.М. Графов, Е.А. Астафьев, С.А. Григорьев, J.H. Miller, A. Thomas, D. Hissel, Y. Bultel, M. Rubio, L. Jackson. Большинство из соответствующих работ применительно к ТПТЭ выполнены в последние два десятилетия. Несмотря на все возрастающий интерес к этой области и успехи в понимании природы электрических флуктуаций и влияния на них режимов работы, систематических исследований электрошумовых методов недостаточно для разработки и организации комплексных систем контроля и диагностики ТПТЭ. В научно-технических источниках информации отсутствуют данные по измерениям, анализу электрических флуктуаций батарей ТПТЭ и их диагностической ценности.

Большое количество параметров, определяющих функционирование ТПТЭ и разнообразие режимов работы, приводят к накоплению больших объемов экспериментальных данных, извлечение диагностических признаков из которых является сложной задачей. Решение этой проблемы может быть найдено повышением уровня интеллектуализации приборов и систем диагностики и контроля путем внедрения методов машинного обучения.

Таким образом, проведение систематических исследований электрических флуктуаций, шумов и релаксационных процессов ТПТЭ, а также их применение для создания и разработки перспективных методов оперативного контроля и диагностики является актуальной научно-технической проблемой. Приложение этих методов позволит решить важную задачу повышения надежности функционирования и стабильности режимов работы источников электрической энергии на основе ТПТЭ.

Объект исследования – методы контроля и диагностики технического состояния водородных твердополимерных топливных элементов.

Предмет исследования – диагностические свойства флуктуационно-шумовых и релаксационных процессов водородных твердополимерных топливных элементов для улучшения эксплуатационных характеристик методов контроля и диагностики технического состояния водородных топливных элементов и их батарей.

Цель работы – создание и разработка научно-методологических основ контроля и диагностики водородных твердополимерных топливных элементов по их электрическим флуктуационно-шумовым и релаксационным характеристикам и построение соответствующих малоинвазивных и оперативных диагностических систем.

Научная проблема состоит в создании методов и приборов флуктуационно-шумового и релаксационного контроля водородных твердополимерных топливных

элементов, позволяющих реализовывать оперативное обнаружение и прогнозирование критических режимов работы и деградации компонентов при минимальном уровне воздействия на объект контроля, а также в их интеллектуализации на основе технологии искусственных нейронных сетей.

Для достижения поставленной цели и решения научной проблемы необходимо выполнить следующие задачи:

1. Анализ существующих подходов к построению систем технического контроля и диагностики водородных твердополимерных топливных элементов; выявление резервов для повышения функциональных возможностей соответствующих методов и их приборной реализации.

2. Разработка и исследование системной диагностической модели водородного топливного элемента. Выбор и обоснование направлений поиска диагностических признаков режимов работы. Разработка флуктуационно-шумовой модели ТПТЭ как источника диагностической информации и экспериментальных методов для их исследования.

3. Теоретическое и экспериментальное исследование повышения эффективности релаксационных методов исследования ТПТЭ. Исследование диагностических свойств релаксационных характеристик, вызванных изменением нагрузки, и разработка соответствующего метода контроля и диагностики ТПТЭ.

4. Разработка экспериментальных стендов для исследования диагностических свойств электрических флуктуационно-шумовых характеристик ТПТЭ. Теоретические и экспериментальные исследования электрических шумов и флуктуаций водородных ТПТЭ. Выявление статистически значимых закономерностей и диагностических признаков для оценки режимов работы, технического состояния и процессов деградации.

5. Экспериментальные исследования флуктуационно-шумовых и релаксационных характеристик батарей ТПТЭ при их продолжительной работе. Адаптация методов контроля и диагностики для батарей ТПТЭ. Разработка методов оценки долговременных временных трендов и их использования для исследования процессов деградации.

6. Разработка научно-методических основ интеллектуализации контроля и диагностики ТПТЭ на основе нейросетевых технологий. Разработка методик и алгоритмов оперативного и малоинвазивного контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы и деградации компонентов ТПТЭ, а также соответствующих структур приборов и систем, их аппаратного, алгоритмического и программного обеспечения.

Научная новизна работы:

Впервые комплексно решена проблема оперативной диагностики режимов работы ТПТЭ на основе нового класса методов флуктуационно-шумового и релаксационного контроля, развитая от стадии теоретических исследований до практической реализации приборов контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы:

1. Предложен новый класс малоинвазивных оперативных методов флуктуационно-шумового и релаксационного контроля твердополимерных топливных элементов и создана научно-методологическая основа их применения для оценки

режимов работы и технического состояния узлов ТПТЭ, позволяющие в 2-10 раз повысить оперативность принятия диагностических решений за счет использования широкополосных измерительных сигналов при минимальном воздействии на объект измерения, существенно упрощающем аппаратную реализацию предложенных методов по сравнению с конкурентами.

2. Найдены диагностические свойства и статистические характеристики электрических шумов и флуктуаций, позволяющие реализовывать маловозмущающие методы контроля избыточного и недостаточного увлажнения мембранно-электродных блоков, неравномерности распределения плотности тока, избыточных диффузионных потерь и эффективности работы катализатора, а также технического состояния основных узлов ТПТЭ и их батарей.

3. Предложена и разработана диагностическая флуктуационно-шумовая модель ТПТЭ, связывающая статистические характеристики измеряемых случайных сигналов с режимами работы, техническим состоянием и процессами деградации.

4. Предложены методики и алгоритмы оценки деградации, прогнозирования остаточного ресурса и планирования технического обслуживания ТПТЭ, позволяющие оценивать и уточнять динамику деградации отдельных компонент мембранно-электродного блока и его эффективной площади по мере накопления данных о текущих режимах эксплуатации.

5. Предложены научные и методические основы построения алгоритмического, аппаратного и программного обеспечения интеллектуальных систем контроля и диагностики ТПТЭ по флуктуационным, шумовым и релаксационным процессам, позволившие разработать нейросетевые модели, обеспечивающие оценку диагностических параметров с погрешностью менее 2% и прогнозирование режимов работы ТПТЭ с упреждением до 10 секунд при надежности прогноза свыше 93%.

Теоретическая значимость работы:

Разработаны и экспериментально подтверждены теоретические основы использования флуктуационно-шумовых и релаксационных характеристик для оперативной диагностики режимов работы и прогнозирования развития деградационных процессов ТПТЭ.

Практическая значимость работы:

1. Предложены и разработаны экспериментальные установки с улучшенными метрологическими характеристиками, позволяющие измерять и исследовать шумовые, флуктуационные и релаксационные процессы для выявления диагностических признаков ТПТЭ.

2. Разработана система оценки частотных характеристик импеданса по релаксационному отклику на скачкообразное возмущение электрического тока с погрешностью амплитудно-частотных характеристик менее 1,6%, обеспечивающая продолжительность измерения меньше в 4-10 раз.

3. Предложена и разработана система оценки спектральной плотности мощности электрических флуктуаций с компенсацией собственных токовых и потенциальных шумов входных измерительных каскадов и режекцией электромагнитных сетевых

помех, позволяющая увеличить более чем на порядок информативную составляющую частотного диапазона флуктуационно-шумового сигнала.

4. Предложено и разработано оригинальное аппаратное, алгоритмическое и программное обеспечение приборов контроля и диагностики ТПТЭ и их батарей по электрическим флуктуационно-шумовым или релаксационным характеристикам.

5. Нейросетевые модели для построения интеллектуальных систем контроля и прогнозирования режимов работы ТПТЭ по флуктуационным, шумовым и релаксационным процессам.

Реализация и внедрение результатов работы. Основные результаты работы были использованы при выполнении Государственного задания Минобрнауки РФ № 8.2568.2011 «Разработка теоретического и алгоритмического обеспечения интегрированного комплекса моделирования специализированных программно-определяемых радиоэлектронных инфокоммуникационных систем» (2011-2013 гг.), Государственного задания Минобрнауки РФ по Соглашению № 075-03-2020-051/6 от 06.11.2020 (номер темы fzsu-2020-0020), Программы стратегического академического лидерства «Приоритет-2030» (соглашение № 075-15-2021-1140), 2021-2022, грантов Российского фонда фундаментальных исследований (РФФИ) №16-38-00464 мол_а «Технический контроль электрохимических источников энергии и прогнозирование их критических режимов работы» (2016-2017 гг.), НИР в рамках международного российско-французского гранта РФФИ-CNRS № 07-08-92167 НЦНИ_а и проекта PICS (INTERNATIONAL PROJECTS OF SCIENTIFIC COOPERATION 2007) «Изучение нестационарных и флуктуационных явлений в топливных элементах с протонообменной мембраной», проекта PROPICE (Prognostics et Health Management de Systemes Piles a Combustible de Type PEMFC, ANR-12-PRGE-0001), поддержанного French National Research Agency (2013-2016), гранта Академии наук Республики Татарстан, предоставленного молодым кандидатам наук (постдокторантам) в рамках Государственной программы Республики Татарстан «Научно-технологическое развитие Республики Татарстан» (Соглашение от 16.12.2024 № 139/2024-ПД). Результаты диссертационной работы внедрены в научно-исследовательскую деятельность и образовательный процесс КНИТУ-КАИ, а также на предприятиях ООО «АЙ ДЖИ ЭФ-ИНЖИНИРИНГ» (г. Казань), ООО «СТЕМ Инструментс» (г. Москва), ООО «НПП РИСАЛ» (г. Казань), Всероссийский научно-исследовательский институт расходомерии – филиал ФГУП «ВНИИМ им. Д.И. Менделеева (г. Казань), ООО «ИРЗ ТЭК» (г. Ижевск), ФГУП «Федеральный НПЦ «Радиоэлектроника» имени В.И. Шимко (г. Казань), АО «Казанское приборостроительное конструкторское бюро» (г. Казань), ОП «ТАТНЕФТЬ-ДОБЫЧА» ПАО «ТАТНЕФТЬ» им. В.Д. Шашина.

Методология и методы исследования. Методология работы базируется на известных математических, физических и электрохимических моделях, экспериментальных результатах и методах измерений слабых сигналов, цифровой обработки сигналов. Полученные в работе данные, а также выявленные закономерности не противоречат фундаментальным принципам и данным, известным из научно-технической литературы. В работе использовались методы математической

статистики, методы математического моделирования, методы параметрической идентификации, а также методы исследования электрохимических систем.

Электрические шумовые, флуктуационные и релаксационные процессы регистрировались путем измерения на экспериментальных установках на основе разработанных и сертифицированных измерительных средств. Для обработки данных и моделирования использовались лицензионные программные пакеты MATLAB, Anaconda Spyder, Jupyter Notebook, NI Multisim, NI LabVIEW.

Достоверность и обоснованность полученных научных результатов подтверждается независимой экспертизой, проведенной при рецензировании опубликованных статей и регистрации объектов интеллектуальной собственности, корректностью использования статистических методов, применением высокоточной измерительной аппаратуры, совпадением результатов моделирования, теоретических и экспериментальных исследований, а также совпадением результатов с опубликованными данными других исследователей.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих российских и международных семинарах и конференциях: Научный семинар (НС) «Физико-химические методы мониторинга окружающей среды» (Казань, 2023 г.), Республиканский НС «Методы моделирования» (Казань, 2023 г.), Всероссийская научно-техническая конференция (НТК) «Информационные технологии в электротехнике и электроэнергетике» (Чебоксары, 2018, 2020, 2022 гг.), International Conference on Advances in Electrical, Computing, Communication and Sustainable Technologies (Бхилаи, Индия, 2023 г.), Совещание «Фундаментальные проблемы ионики твердого тела» (Черноголовка, 2021 г.), Международный форум «Kazan Digital Week» (Казань, 2020, 2021 гг.), Молодежная международная НТК (МНТК) «Прикладная электродинамика, фотоника и живые системы» (Казань, 2015, 2021 гг.), Всероссийская НТК «Динамика нелинейных дискретных электротехнических и электронных систем» (Чебоксары, 2009, 2010, 2019, 2021, 2023 гг.), Международная научно-практическая конференция (НПК) «Перспективы развития энергетических систем: декарбонизация экономики, водородная энергетика» (Казань, 2021 г.); International Conference on Electrotechnical Complexes and Systems (Уфа, 2021 г.), Молодежная МНК «Туполевские чтения» (Казань, 2013, 2015, 2021 гг.), European conference on renewable energy systems (Анталья, 2015 г., Сараево, 2017 г., Стамбул, 2018, 2021 гг., Мадрид, 2019 г.), Ural Symposium on Biomedical Engineering, Radioelectronics and Information Technology (Екатеринбург, 2019, 2020 гг.), ВНК «Наука, технологии, инновации» (Новосибирск, 2020 г.), МНТК «Проблемы и перспективы развития энергетики, электротехники и энергоэффективности» (Чебоксары, 2019), МНТК «Научный форум телекоммуникации: теория и технологии, ТТТ» (Казань, 2008, 2012, 2014, 2017, 2019, 2023 гг.), International Conference on Actual Problems of Electron Devices Engineering (Саратов, 2018 г.), МНК «Нигматуллинские чтения» (Казань, 2018, 2023 гг.), МНТК Systems of Signal Synchronization, Generating and Processing in Telecommunications (Казань, 2017 г.), International Conference on Materials, Alloys and Experimental Mechanics (Казань, 2013,

2014, 2017 г.), International Siberian Conference on Control and Communications (Москва, 2016 г.), Actual Problems of Electron Devices Engineering (Саратов, 2016, 2022 гг.), МНТК «Проблемы и перспективы развития авиации, наземного транспорта и энергетики» (Казань, 2015 г.), International Conference on Fundamentals & Development of Fuel Cells (Toulouse, France, 2015 г.), 225 th Electrochemical Society Meeting (Orlando, USA, 2014), International Congress on Ultra Modern Telecommunications and Control Systems (Санкт-Петербург, 2014 г.), Hydrogène, Systèmes et Piles à Combustible (Poitiers, France, 2014 г.).

Публикации. По материалам диссертации опубликована 101 печатная работа, в том числе 17 статей в журналах из перечня рекомендованных ВАК РФ по специальности 2.2.8. (Категории K1 и K2), 8 статей в журналах, входящих в международные наукометрические базы Scopus/WoS, приравняемых к категории K1 журналов, рекомендованных ВАК РФ, 13 статей в других изданиях наукометрических баз Scopus и WoS, 1 статья в журнале ВАК по смежной специальности, 4 раздела в коллективных монографиях, 6 патентов РФ на изобретение, 15 свидетельств на программы для ЭВМ и 37 публикаций в трудах и сборниках конференций. Автор имеет более 12 единоличных публикаций, в том числе 4 статьи в журналах, включенных в перечень ВАК по специальности 2.2.8, 1 свидетельство на программу для ЭВМ, 7 работ в материалах всероссийских и международных конференций.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, шести глав, заключения и списка использованной литературы. Работа изложена на 376 страницах машинописного текста, содержит 205 рисунков, 9 таблиц, 293 формулы, список использованной литературы из 536 источников отечественных и зарубежных авторов, 10 приложений.

Диссертация соответствует паспорту специальности 2.2.8. «Методы и приборы контроля и диагностики материалов, изделий, веществ и природной среды» по следующим пунктам:

п. 1. «Научное обоснование новых и совершенствование существующих методов, аппаратных средств и технологий контроля, диагностики материалов, изделий, веществ и природной среды, способствующее повышению надежности изделий и экологической безопасности окружающей среды» (разработаны научно-технические основы применения флуктуационно-шумовых и релаксационных характеристик для оперативного контроля и диагностики технического состояния и критических режимов работы твердополимерных топливных элементов);

п. 6 «Разработка математических моделей, алгоритмического и программно-технического обеспечения обработки результатов регистрации сигналов в приборах и средствах контроля и диагностики с целью автоматизации контроля и диагностики, подготовки их для внедрения в цифровые информационные технологии» (разработаны нелинейная и линейная системные, линейная электрическая и флуктуационно-шумовая модели твердополимерного топливного элемента, алгоритмическое и программное обеспечение приборов и систем контроля и диагностики на основе анализа флуктуационно-шумовых и релаксационных характеристик);

п. 7. «Автоматизация технологий, приборов контроля и средств диагностирования, способствующая снижению трудоемкости, увеличению оперативности и достоверности оценки эксплуатационного ресурса изделий, повышению уровня экологической безопасности окружающей среды» (разработаны типовые структуры локальных и распределенных автоматизированных систем интеллектуального оперативного контроля и диагностики ТПТЭ).

Основные положения, выносимые на защиту:

1. В ходе исследований обоснован новый класс методов и систем неразрушающего контроля и диагностики водородных твердополимерных топливных элементов, основанный на использовании собственных электрических шумов и флуктуаций ТПТЭ, позволивший обогатить существующие методы возможностями обнаружения критических режимов увлажнения, неравномерного распределения плотности тока, изменения интенсивности процессов диффузионного транспорта реагентов и скорости электрохимической реакции без применения возмущающих сигналов.

2. Системные нелинейная и линейная модели и электрическая флуктуационно-шумовая модель ТПТЭ, позволившие разработать научные основы построения методов маловозмущающего контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы ТПТЭ по наблюдениям широкополосных электрических флуктуационно-шумовых и релаксационных сигналов, повышающих оперативность принятия решений в 2-10 раз.

3. Выявленные в результате теоретических и экспериментальных исследований электрических шумов и флуктуаций ТПТЭ взаимосвязи спектральных и корреляционных характеристик с внутренними физико-химическими процессами ТПТЭ и техническим состоянием его основных компонентов, позволившие разработать методики обнаружения и различения критических режимов избыточного и недостаточного увлажнения, блокирования поверхности мембранно-электродного блока, кислородного и водородного голодания, неравномерности плотности тока, избыточных потерь переноса заряда при использовании сигналов, измеряемых в диагностически информативном частотном диапазоне 0,1Гц-1кГц.

4. Метод алгоритмического повышения точности оценки спектра мощности электрических флуктуаций на основе двухканального способа компенсации внутренних шумов измерительного оборудования, способа режекции сетевых наводок, а также способа формирования маловозмущающего воздействия на ТПТЭ, основанного на модуляции нагрузки, позволивший разработать маловозмущающие экспериментальные методы и стенды для измерения флуктуационно-шумовых и релаксационных характеристик и расширить диагностически информативный частотный диапазон более чем на порядок.

5. Закономерности долговременных режимов работы ТПТЭ для разработки моделей деградации параметров линейной модели с возможностью уточнения в процессе накопления статистики для прогнозирования технического состояния компонентов мембранно-электродного блока, эффективной площади мембраны, эксплуатационных характеристик и остаточного ресурса ТПТЭ и их батарей.

6. Экспериментальный материал и систематизированная база данных по электрическим релаксационным и флуктуационно-шумовым характеристикам ТПТЭ в различных режимах эксплуатации и научно-практические подходы, полученные на их основе, для построения интеллектуальных систем оперативного контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы ТПТЭ.

7. Результаты исследования и апробации экспериментальных образцов устройств для измерения релаксационных и флуктуационно-шумовых сигналов, а также приборов контроля и диагностики на их основе для локальных и распределенных систем управления энергетическими установками на базе ТПТЭ с возможностью получения оперативной диагностической информации и прогнозирования режимов работы.

Личный вклад автора: научно-техническое обоснование и развитие теории и техники систем диагностики водородных ТПТЭ на основе электрических шумовых, флуктуационных и релаксационных процессов; определение направлений развития научных исследований по указанной тематике и в смежных отраслях; апробация, опубликование и внедрение результатов исследований. Все теоретические и экспериментальные результаты получены автором лично или при его определяющем участии. Работы, отражающие основные результаты диссертации, написаны автором лично или при его непосредственном взаимодействии с членами научного коллектива.

2. ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении дана общая характеристика диссертационной работы, показана ее актуальность и определена цель, поставлены задачи исследований, показана научная новизна и практическая значимость работы, методология и методы исследования, достоверность и обоснованность результатов, определены основные положения, выносимые на защиту, приведены апробация и публикации, структура и объем диссертации, соответствие паспорту специальности и личный вклад автора.

В главе 1 рассмотрены современное состояние технологии водородных топливных элементов, вопросы, связанные с особенностями их эксплуатации. Показано, что совокупность эксплуатационных характеристик твердополимерных топливных элементов (ТПТЭ), таких как высокий КПД, экологическая безопасность, технологичность производства, низкая рабочая температура, делает их одними из наиболее перспективных элементов водородной генерации электрической энергии. Установлено, что одним из факторов, сдерживающих расширение объема и спектра применений ТПТЭ, является необходимость существенного повышения их надежности и срока службы. Необходимы новые решения, позволяющие обнаруживать критические режимы работы и неисправности, что делает актуальной задачу разработки методов и средств оперативного контроля, диагностики и прогнозирования технического состояния водородных топливных элементов. Соответствующие методы и приборы должны обнаруживать на ранних стадиях развития и прогнозировать: пересыхание и переувлажнение мембранно-электродного блока, деградацию катализатора и полимерной мембраны, нарушение работы газодиффузионного слоя, неоднородную плотность тока в полимерной мембране и т.п.

Критический анализ существующих методов и приборов контроля и диагностики ТПТЭ показал, что они не в полной мере удовлетворяют требованиям оперативности диагностических решений, минимального воздействия на объект, высокой информативности и обеспечения контроля и диагностики непосредственно в процессе функционирования ТПТЭ. В этом контексте наиболее перспективными методами являются подходы, использующие информационные свойства электрических флуктуационно-шумовых и релаксационных процессов ТПТЭ. Эффективность этих подходов обусловлена высокой информативностью за счет широкополосности используемых флуктуационно-шумовых сигналов (ФШС).

Большинство работ по исследованию ФШС в ТПТЭ посвящены внутренним физико-химическим процессам, оптимизации конструктива и выбору материалов, оставляя в стороне вопросы создания научно-методических основ методов и приборов контроля и диагностики ТПТЭ. Исследования, посвященные вопросам диагностики ТПТЭ по ФШС, во многом являются продолжением работ, инициированных Научной школой Р.Ш. Нигматуллина электрохимических преобразователей информации Казанского национального исследовательского технического университета им. А.Н. Туполева-КАИ, а также результатом научного сотрудничества с лабораторией Института RPrime Университета города Пуатье (Франция), и положены в основу данной диссертации [14-16; 23-25]. Кроме того, следует отметить практически полное отсутствие работ по исследованию ФШС большой совокупности ячеек ТПТЭ (батарей) и их диагностической связи с режимами работы и техническим состоянием применительно к созданию приборов контроля и диагностики.

Измерения характеристик ФШС и сигналов релаксации, содержащих диагностическую информацию, осуществляются при слабых возмущениях режимов работы или без них, что позволяет предложить малоинвазивные методы контроля и диагностики. Такой подход обеспечивает своевременное обнаружение неисправностей и критических режимов работы, а также разработку рекомендаций для поддержания высокого КПД и стабильности номинального режима работы.

В главе 1 были выявлены научно-методические направления создания эффективных технологий контроля и диагностики топливных элементов, сформулирована цель и задачи исследований.

В главе 2 разработаны нелинейная и линейная системные модели ТПТЭ, являющиеся научно-методической основой для анализа и установления диагностических свойств. Нелинейная модель (рисунок 1, а) устанавливает взаимосвязь между входными (массовые расходы водорода $\dot{m}_a$ и окислителя $\dot{m}_c$, давление на анодной и катодной сторонах P_a и P_c , увлажненности водорода H_a и окислителя H_c , температура ячейки T_y) и выходными (электрическая мощность P_Σ , тепловой поток Q_T и массовая скорость генерации воды $\dot{m}_{H_2O}$) сигналами:

$$\begin{cases} P_\Sigma = f_p(R_H, T_y, \dot{m}_a, \dot{m}_c, P_a, P_c, H_a, H_c); \\ Q_T = f_q(R_H, T_y, \dot{m}_a, \dot{m}_c, P_a, P_c, H_a, H_c); \\ \dot{m}_{H_2O} = f_m(R_H, T_y, \dot{m}_a, \dot{m}_c, P_a, P_c, H_a, H_c). \end{cases} \quad (1)$$

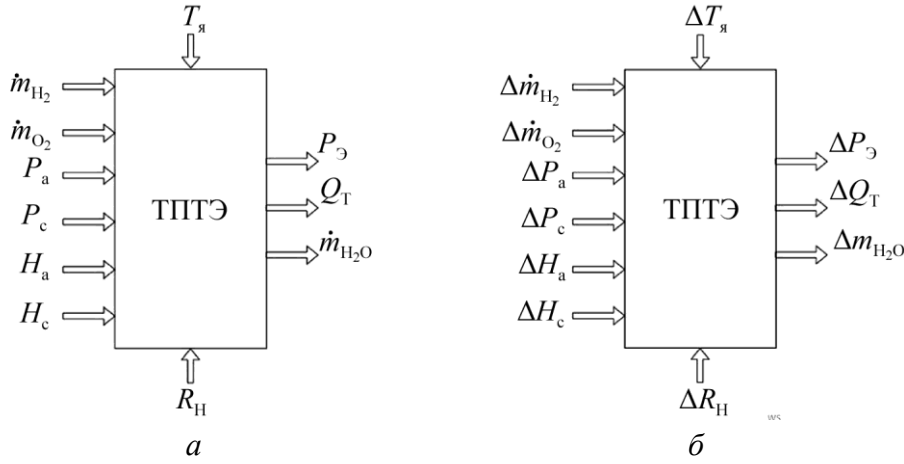


Рисунок 1 – Нелинейная (а) и линейная (б) системные модели ТПТЭ

В общем случае модель (1) включает в себя сложные нелинейные функциональные зависимости. Выходной сигнал P_{Σ} может выражаться через измеряемые параметры тока I_H и напряжения U_H нагрузки, которые представляют собой в некоторой рабочей точке нелинейной характеристики сумму средней и флуктуационно-шумовой составляющих $I_H(t) = \overline{I_H} + i'_H(t)$, $U_H(t) = \overline{U_H} + u'_H(t)$.

Соотношения (1) содержат диагностические связи входа и выхода для больших диапазонов изменения режимов работы ТПТЭ. Такой подход малоприменим для целей контроля и диагностики из-за вмешательства в процесс функционирования. В большинстве случаев измерение нелинейных характеристик (1) возможно только на специальных стендах в условиях производства или обслуживания.

В большинстве энергетических установок ТПТЭ работает в номинальном режиме, обеспечивающем высокий КПД и стабильность работы. Поэтому большой практический интерес представляет диагностика в режиме малых возмущений относительно номинального режима:

$$\mathbf{x}_0 = [R_{H0}, T_{я0}, Q_{a0}, Q_{c0}, P_{a0}, P_{c0}, H_{a0}, H_{c0}]^T. \quad (2)$$

В этом случае соотношения (1) могут быть линеаризованы удержанием линейного члена разложения Тейлора:

$$\mathbf{y} = \mathbf{K}(\mathbf{x}_0, \omega, t) \mathbf{x}, \quad (3)$$

где $\mathbf{x} = [\Delta R_H, \Delta T_{я}, \Delta Q_a, \Delta Q_c, \Delta P_a, \Delta P_c, \Delta H_a, \Delta H_c]^T$ – вектор возмущений входных сигналов; $\mathbf{y} = [\Delta P_{\Sigma}, \Delta Q_T, \Delta m_{H_2O}]^T$ – вектор возмущений выходных сигналов; $\mathbf{K}$ – матрица коэффициентов передачи. При стабильной и исправной работе ТПТЭ коэффициенты $\mathbf{K}$ стационарны, а при отклонении режимных параметров – нестационарны. Выход за пределы допустимых значений служит признаком для решения задач контроля, а конкретный коэффициент характеризует тип неисправности и ее локализацию.

Работа любого ТПТЭ сопровождается наличием собственных случайных флуктуаций указанных параметров, вызванных множеством случайных внешних и внутренних факторов. Непременным атрибутом любой электрической системы также

являются шумы, имеющие тепловую, дробовую и фликкер-шумовую природу. ФШС, вызванные внутренними факторами, характеризуют техническое состояние, и поэтому могут быть положены в основу технологии контроля и диагностики. Примеры, ФШС, измеренные в лаборатории Института RPrime Университета города Пуатье (Франция) при различных режимах работы ТПТЭ, представлены на рисунке 2.

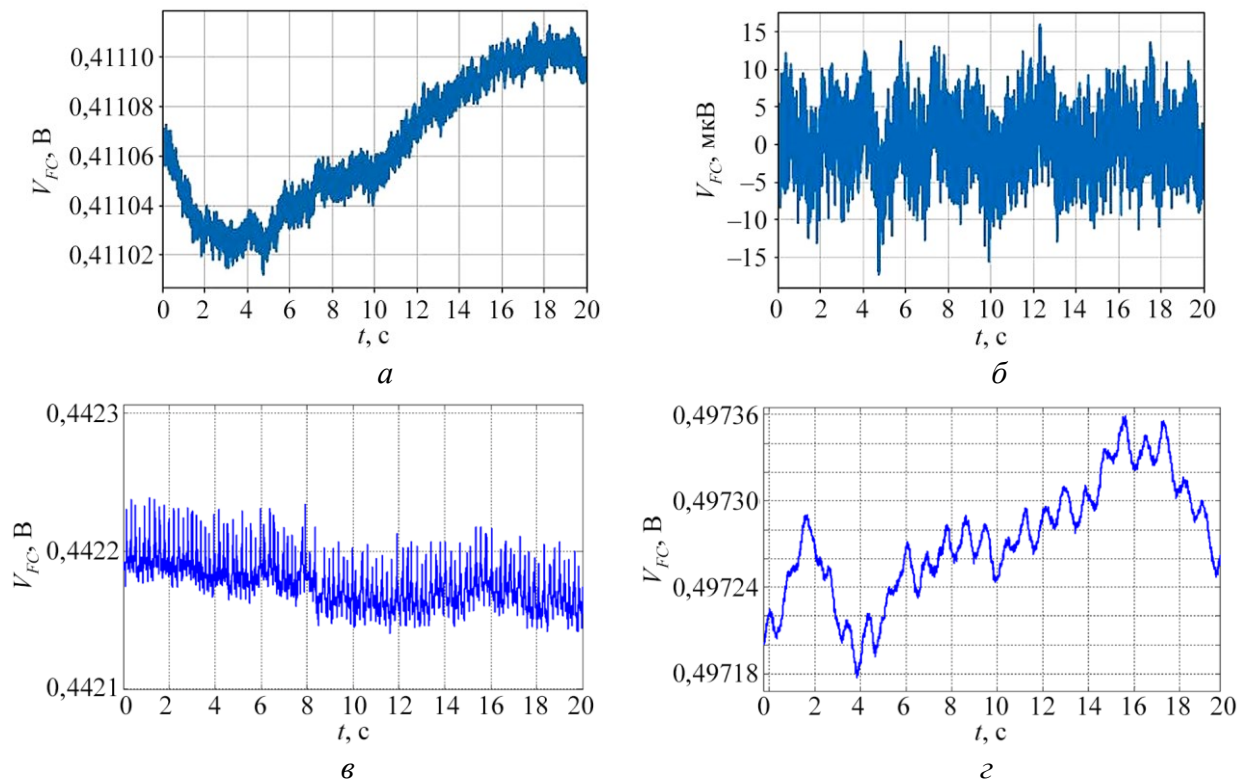


Рисунок 2 – Примеры шумовых и флуктуационных сигналов напряжения ТПТЭ, измеренных на нагрузке 0,4 Ом: измеряемый ФШС (а), шум в номинальном режиме работы (б), ФШС в режимах избыточного (в) и недостаточного (г) увлажнения мембранно-электродного блока

Другими информативными признаками для разработки малоинвазивных систем контроля и диагностики являются импедансные и релаксационные характеристики (рисунок 3), позволяющие производить оценку текущего состояния и отслеживать долговременные временные тренды.

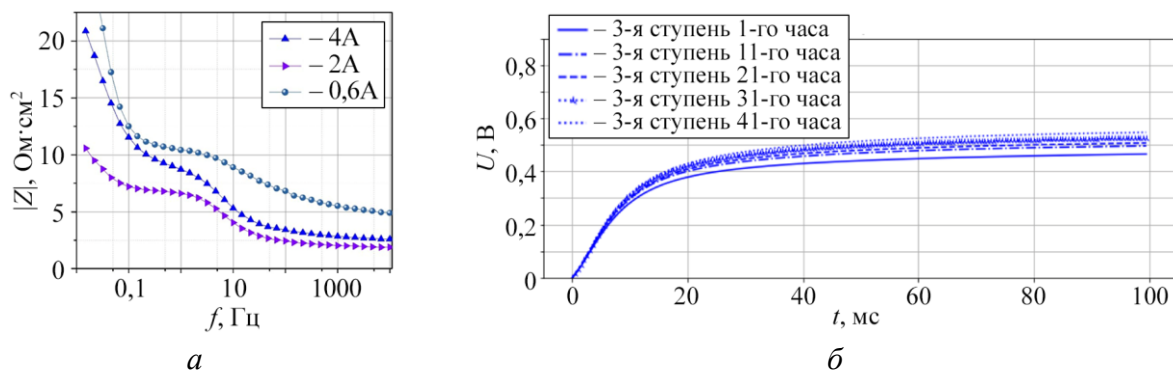


Рисунок 3 – Примеры АЧХ импеданса водород-воздушного ТПТЭ с эффективной площадью мембраны 5 см² при различных токах нагрузки и релаксационных характеристик восьмиземной батареи ТПТЭ в режиме переключения между токами 50-100А, демонстрирующие изменение внутреннего состояния при эксплуатации

Для разработки малоинвазивных методов контроля и диагностики использовалась линейная электрическая диагностическая модель на основе модели Рэндлса – Эршлера (рисунок 4), включающая в себя четыре элемента с пятью параметрами: емкость двойного электрического слоя C ; сопротивление переноса зарядов r_e ; диффузионный импеданс Z_D ; сопротивление мембраны R_M .

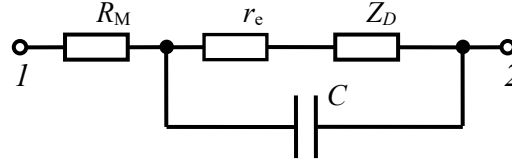


Рисунок 4 – Малосигнальная эквивалентная электрическая схема ТПТЭ

С точки зрения диагностики, эти параметры характеризуют: R_M – состояние мембраны; r_e – скорость электрохимической реакции и состояние катализатора; Z_D – процессы диффузионного транспорта заряда; C – поле зарядов на границе электрода. Линейной динамической модели (рисунок 3) соответствует импеданс:

$$Z_{FC}(j\omega) = R_M + (r_e + Z_D)Z_C / (r_e + Z_D + Z_C), \quad (4)$$

где Z_D описывается обобщенным элементом Варбурга:

$$Z_D = R_D \operatorname{th}((j\omega\tau_D)^v) / (j\omega\tau_D)^v. \quad (5)$$

В работе предложена аппроксимация обобщенного элемента Варбурга в измеряемом частотном диапазоне посредством RC -цепей Кауэра:

$$Z_{Dn} = R_D \left(R'_1 + 1 / \left(j\omega C'_1 \tau_D + 1 / \left(R'_2 + 1 / \left(j\omega C'_2 \tau_D + \dots + 1 / (j\omega C'_n \tau_D + 1 / R'_{n+1}) \dots \right) \right) \right) \right), \quad (6)$$

где $R'_i = R_i / R_D$, $C'_i = R_D C_i / \tau_D$ – безразмерные табличные параметры. Поскольку диффузионный импеданс определяет импеданс ТПТЭ только в низкочастотной области, для практического применения достаточно его представления в форме модели Кауэра второго и третьего порядков. Моделирование показало, что среднеквадратическая погрешность такой аппроксимации составляет 0,47 и 0,048% в частотном диапазоне в три декады.

Предложена флуктуационно-шумовая модель (рисунок 5, а) ТПТЭ, в которой активные источники отражают генерацию тепловых, дробовых и фликкер шумов, а изменения параметров пассивных элементов обуславливают флуктуационные явления. В свою очередь, пассивные элементы изменяются под действием флуктуаций температуры T , давления P , объемного расхода Q газов, эффективной площади электродов S_e . Разница спектрального состава и амплитуд этих флуктуаций позволяет расширить функциональные возможности диагностики.

Анализ предложенных моделей позволяет выделить три основных направления разработки малоинвазивных методов контроля и диагностики ТПТЭ: 1) импедансная диагностика; 2) динамическая релаксационная диагностика; 3) флуктуационно-шумовая диагностика.

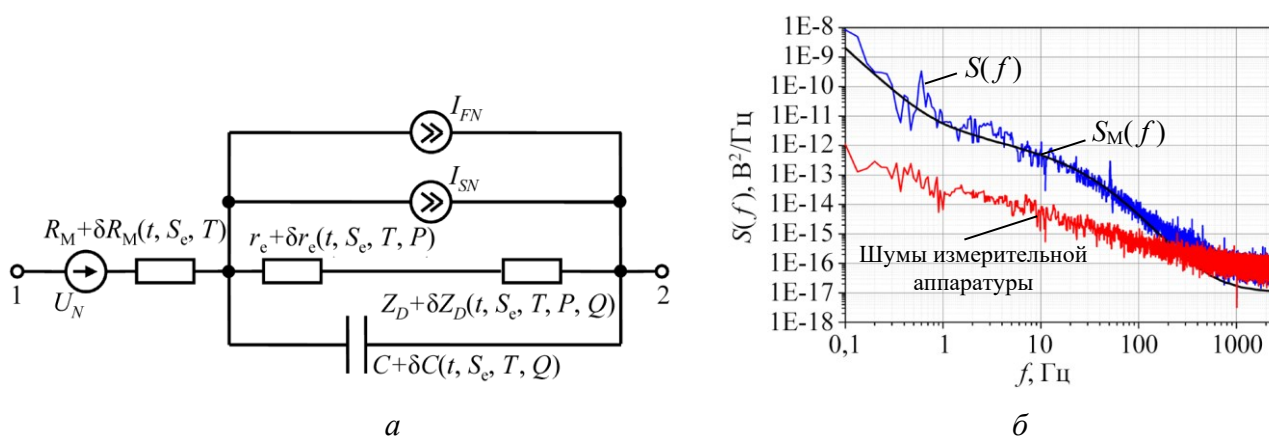


Рисунок 5 – Флуктуационно-шумовая модель (а), сравнительный пример спектров смоделированного S_M и измеренного S флуктуационно-шумового сигнала (б)

Глава 3 посвящена разработке научно-технических основ диагностики и контроля ТПТЭ по импедансным и релаксационным характеристикам, а также исследованиям их диагностических свойств.

Для сигналов с широким спектром в полосе $\omega_{\min} \leq \omega \leq \omega_{\max}$ частотную характеристику импеданса можно оценить по соотношению:

$$\dot{Z}(j\omega) = \text{FFT}(w(t)u(t)) / \text{FFT}(w(t)i(t)), \quad (7)$$

где FFT – быстрое преобразование Фурье; $w(t)$ – оконная функция.

Для апробации импедансного и релаксационного методов с использованием потенциостата Solartron Multistat 1480 проведены исследования на электрохимическом аналоге – системе ферри-ферроцианид:

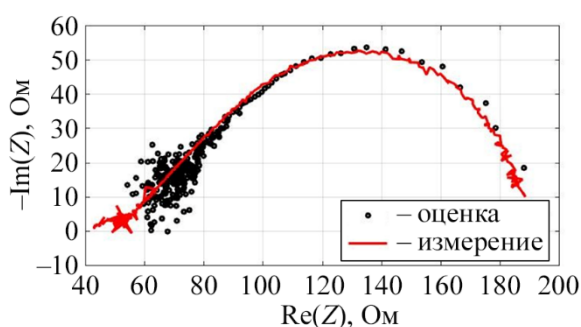


Рисунок 6 – Оценка годографа импеданса ТПТЭ по методике (7)

аналоге – системе ферри-ферроцианид: $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6 / \text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ в эквимольной концентрации 25 моль/м^3 с фоновым электролитом K_2SO_4 300 моль/м^3 и платиновым рабочим электродом площадью $0,03 \text{ см}^2$. Результаты измерения импеданса по методике (7) с прямоугольным зондирующим импульсом тока $i(t)$ амплитудой 125 мкА показаны на рисунке 6. Для повышения точности оценки в области высоких частот предложена методика

компенсации сетевых помех по характерным пикам в спектре сигнала. Методика позволила уменьшить погрешности оценки АЧХ до $1,6\%$ и ФЧХ до $3,8\%$.

Анализ влияния собственных шумов измерительной аппаратуры показал, что для обеспечения погрешности ФЧХ 3% СКВ шумов не должна превышать 20 мкВ , а для измерения с такой же точностью АЧХ допускается увеличение шумов до 75 мкВ .

Экспериментальные исследования диагностических сигналов проводились в лаборатории Института RPrime Университета города Пуатье (Франция) для ТПТЭ, мембранно-электродный блок которого с эффективной площадью 5 см^2 изготовлен из

протонообменной пленки *Nafion* 112, гидрофобизированных углеграфитовых тканевых электродов, покрытых каталитическим слоем с платиновой нагрузкой $0,5 \text{ мг/см}^2$ на носителе *Vulcan XC-72*. Экспериментальная установка *BANC TEST* фирмы *Fuel cell technologies, Inc* позволяла выбирать тип окислителя: воздух или кислород и задавать семь рабочих параметров: температуру ячейки T_{FC} , увлажненность топлива η_a и окислителя η_c , объемный расход топлива Q_a и окислителя Q_c , давление на выходе анодного P_a и катодного P_c газотранспортных каналов, а также измерять электрические ток, напряжение и импеданс.

Экспериментальные исследования импедансных характеристик ТПТЭ (рисунок 7) показали достаточную чувствительность инструментальных измерений для их практического применения в задачах контроля и диагностики.

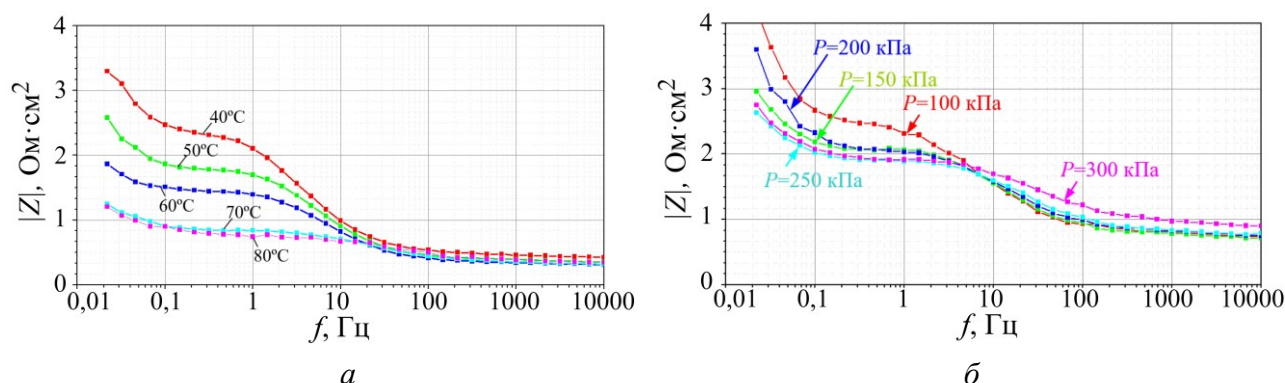


Рисунок 7 – Модули частотных характеристик импеданса ТПТЭ $|Z_{FC}(f)|$ при изменении температуры ячейки (а) и давления газообразных реагентов P (б)

Анализ изменения идентифицированных параметров для разных электрических рабочих режимов показывает их соответствие общим закономерностям протекания физико-химических процессов, обеспечивающих работу ТПТЭ.

Таким образом, электрохимический импеданс – высокоэффективный диагностический инструмент, позволяющий обнаруживать различные нарушения работы ТПТЭ, связанные с процессом протекания электрохимической реакции, скоростью диффузии, проводимостью полимерной мембраны и других токопроводящих элементов. Предложенная модификация метода измерения импеданса позволяет использовать более простые по сравнению с традиционной импедансной спектроскопией схемы формирования зондирующих сигналов с повышенной в 2-10 раз оперативностью принятия решений без снижения точностных характеристик за счет использования сигналов с широким спектром.

Контроль и диагностика ТПТЭ по импедансному методу включает:

1) измерение частотной характеристики импеданса $Z(j\omega)$ в частотном диапазоне $\omega_{\min} \ll \omega < \omega_{\max}$, где $\omega_{\min} \sim D_{\text{эфф}}/\delta^2$, $\omega_{\max} \sim 1/r_e C$, $D_{\text{эфф}}$ – эффективный коэффициент диффузии, δ – толщина диффузионного слоя;

2) идентификацию параметров линейной электрической модели (см. рисунок 4): R_M , r_e , R_D , τ_D и C по стандартным алгоритмам Левенберга – Марквардта минимизации квадратичного функционала невязки $\Delta Z = Z(j\omega) - Z_M(j\omega)$;

3) осуществление контроля по величине отклонения идентифицированных параметров от заданных норм. Определение неисправного узла ТПТЭ по типу и значению идентифицируемого параметра.

Повышение оперативности контроля и диагностики ТПТЭ может быть обеспечено релаксационным методом, основанным на измерении отклика ТПТЭ на скачкообразный зондирующий сигнал (рисунок 10). Исследованы два вида воздействия в форме скачков тока и нагрузки. Для обеспечения линейности величины скачков ограничены условием $\Delta U_H < \phi_T$, где $\phi_T = kT/q$, k – постоянная Больцмана; q – заряд электрона. Таким образом, предложен алгоритм релаксационного метода:

- 1) подача скачкообразного воздействия в форме тока δi или нагрузки δr_H ;
- 2) измерение релаксационного отклика $u(t)$ напряжения в течение $T = \delta^2/D_{\text{эфф}}$;
- 3) аппроксимация отклика $u(t)$ в виде суперпозиции экспоненциальных функций с постоянными времени, определяемыми элементами линейной модели (см. рисунок 4);

- 4) идентификация параметров линейной модели (см. рисунок 4): R_M, r_e, R_D, τ_D, C по параметрам аппроксимации релаксационной характеристики;

- 5) контроль и диагностика. Осуществление контроля по величине отклонения идентифицированных параметров от заданных норм. Определение неисправного узла ТПТЭ по типу и значению идентифицируемого параметра.

Пример релаксационного отклика на скачок тока ΔI литиевого источника тока приведен на рисунке 8. Для модели второго порядка такая характеристика описывается суперпозицией скачка напряжения $U_2 = R_2 \Delta I$ и двух экспоненциальных функций с амплитудами $U_1 = R_1 \Delta I$, $U_2 = R_3 \Delta I$ и постоянными времени $\tau_1 = 1/R_1 C_1$, $\tau_2 = 1/R_3 C_2$:

$$u(t) = U_0 + U_1(1 - e^{-t/\tau_1}) + U_2(1 - e^{-t/\tau_2}). \quad (8)$$

Полученные величины $U_0, U_1, U_2, \tau_1, \tau_2$ позволяют оценить параметры упрощенной линейной модели, являющиеся основой принятия диагностических решений.

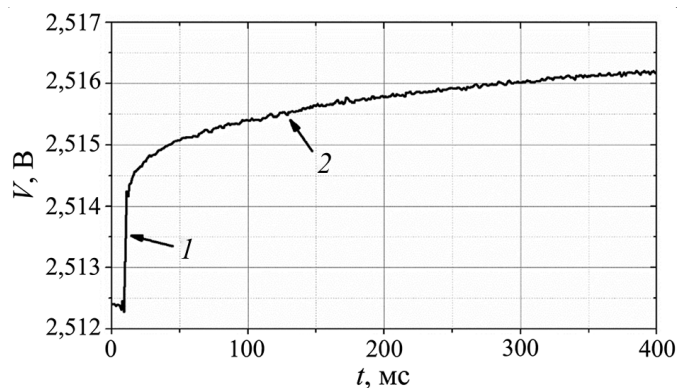


Рисунок 8 – Пример релаксационного процесса ЭХИТ

Анализ релаксационных характеристик, вызванных ступенчатым изменением тока нагрузки, проведенный для литиевых источников тока и батарей ТПТЭ, позволяет оценивать параметры эквивалентной схемы и отслеживать временные тренды при анализе процессов деградации. Система формирования зондирующего сигнала может

быть существенно упрощена при использовании скачкообразного изменения нагрузки, например, путем коммутации дополнительной нагрузки (рисунок 9, а).

Показана возможность реализации эффективного с вычислительной точки зрения алгоритма идентификации параметров эквивалентной схемы второго порядка (рисунок 9, б), включающего в себя двухэтапную компьютерную подгонку двухэкспоненциальной аппроксимации (8) релаксационного процесса и решение системы линейных уравнений вида:

$$\begin{cases} \alpha_{11}R_1 + \alpha_{12}R_2 + \alpha_{13}R_3 = \beta_1; \\ \alpha_{21}R_1 + \alpha_{22}R_2 + \alpha_{23}R_3 = \beta_2; \\ \alpha_{31}R_1 + \alpha_{32}R_2 + \alpha_{33}R_3 = \beta_3, \end{cases} \quad (9)$$

где коэффициенты α и β находятся по коэффициентам аппроксимации. Проведенные на оригинальном экспериментальном стенде исследования электрохимического аналога ТПТЭ – литиевых источников тока в диапазоне температур от -8°C до $+50^\circ\text{C}$ подтвердили работоспособность и эффективность предложенного метода релаксационной диагностики.

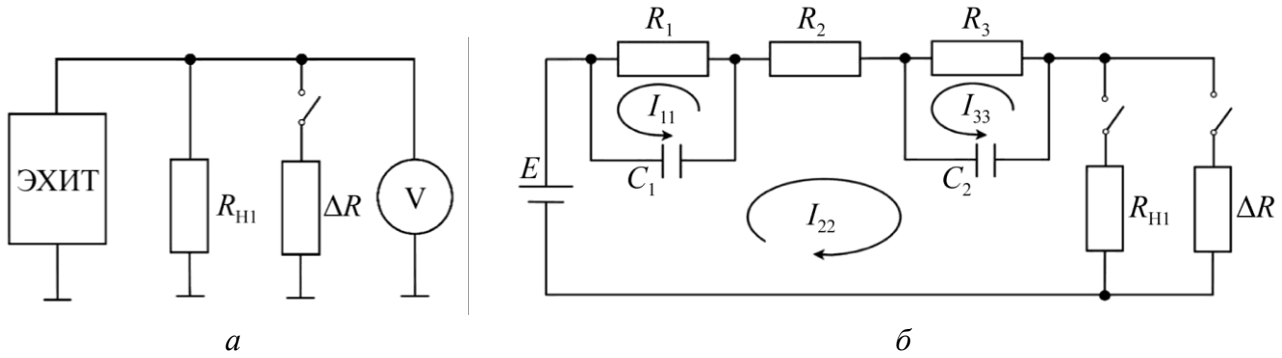


Рисунок 9 – Схема коммутации основной R_{H1} и дополнительной нагрузки ΔR (а) и расчет параметров соответствующего переходного процесса (б)

На основе аппроксимации диффузионного импеданса с использованием эквивалентной схемы Кауэра разработана методика идентификации параметров модели Рэндлса – Эршлера по результатам анализа релаксационных характеристик ТПТЭ, вызванных скачкообразным изменением электрического тока. Предложенное решение позволяет проводить оценку параметров модели на основе трехэкспоненциальной аппроксимации переходного процесса:

$$U(t) = U_L - U_1 e^{-t/\tau_1} - U_2 e^{-t/\tau_2} - U_3 e^{-t/\tau_3} \quad (10)$$

и следующих соотношений:

$$\begin{aligned} r_M &= A; \quad r_e = B + C + D - R_D; \quad C_{dl} = \tau_1 \tau_2 \tau_3 / (B \tau_2 \tau_3 + C \tau_1 \tau_3 + D \tau_1 \tau_2); \\ \tau_D &= (B \tau_2 \tau_3 (\tau_2 + \tau_3) + C \tau_1 \tau_3 (\tau_1 + \tau_3) + D \tau_1 \tau_2 (\tau_1 + \tau_2)) / (K_1 (B \tau_2 \tau_3 + C \tau_1 \tau_3 + D \tau_1 \tau_2)); \\ R_D &= ((B \tau_2 \tau_3 + C \tau_1 \tau_3 + D \tau_1 \tau_2) / (K_2 \tau_D^2) - (B + C + D)) / (K_4 - 1), \end{aligned} \quad (11)$$

где $A = \Delta U / I_0$; $B = U_1 / I_0$; $C = U_2 / I_0$; $D = U_3 / I_0$; I_0 – амплитуда зондирующего скачка тока; $\Delta U = U_1 + U_2 + U_3$ – величина скачка потенциала; U_L и U_0 – напряжения после и до релаксации соответственно, $K_1 = C_2' R_3' + C_1' R_3' + C_1' R_2'$ и $K_4 = R_1'$ – безразмерные коэффициенты, вычисленные на основе схемы замещения диффузионного импеданса (6) второго порядка. Процедуру аппроксимации трехэкспоненциальной модели (10) целесообразно проводить поэтапно.

Предлагаемые малоинвазивные релаксационные и импедансные методы позволяют при минимальном уровне возмущений характеризовать техническое состояние ТПТЭ. Преимуществом предложенного релаксационного метода является повышение оперативности получения диагностической информации в $\eta = 2 - 10$ раз.

Глава 4 посвящена теоретическим и экспериментальным исследованиям диагностических свойств электрических шумов и флуктуаций ТПТЭ. При этом под электрическими флуктуациями и шумами понимаются случайные отклонения токов и

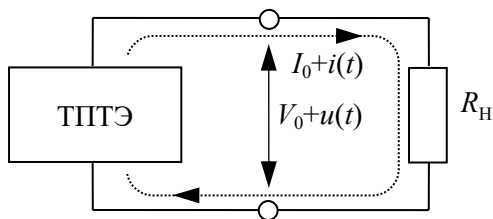


Рисунок 10 – Электрические шумы и флуктуации ТПТЭ

напряжений от средних значений V_0 и I_0 в процессе естественного функционирования ТПТЭ (рисунок 10):

$$V_{FC} = V_0 + u(t), \quad I_{FC} = I_0 + i(t). \quad (12)$$

В работе предложена классификация флуктуационно-шумовых процессов в ТПТЭ по следующим признакам:

1) по механизму возникновения: флуктуации, связанные со случайными изменениями параметров электрохимической системы, и внутренние шумы ТПТЭ тепловой, дробовой и фликкер-шумовой природы;

2) по уровню: микрофлуктуации и шумы, обусловленные шумовыми процессами и соизмеримыми с ними флуктуациями; флуктуации среднего уровня, превышающие величину шумов в пределах линейного режима работы системы; макрофлуктуации, при которых система проявляет нелинейные свойства;

3) по повторяемости во времени: апериодические (см. рисунок 2, а) и квазипериодические (повторяющиеся) (см. рисунок 2, в и г) флуктуации.

Все эти типы флуктуационно-шумовых процессов имеют различную диагностическую ценность и требуют, соответственно, различных подходов для обработки и извлечения информации. Предложенная классификация является дополнительным инструментом при выборе методов контроля и диагностики.

Научно-методическая основа предложенной технологии флуктуационно-шумовой диагностики заключается в статистическом представлении механизмов влияния внутреннего состояния и критических режимов работы на характеристики измеряемых на нагрузке флуктуационных и шумовых процессов. Теоретически и экспериментально подтверждена возможность селекции различных факторов по спектру флуктуационно-шумовых сигналов, обусловленных особенностями динамики соответствующих процессов.

Теоретически показана возможность обнаружения неравномерности плотности тока в мембране (например, при частичной блокировке поверхности водным конденсатом, неправильной стехиометрии). Эта возможность важна для организации систем контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы ТПТЭ, поскольку неравномерность снижает стабильность работы и ускоряет процессы деградации. Также показано, что фликкер-шумы позволяют получать информацию о процессах конденсации и испарения в МЭБ. Характер роста капель воды, обусловленный процессами конденсации и испарения, может меняться в зависимости от чистоты поверхности МЭБ, скорости подачи газов, распределения температуры и т.д. Эти факторы, как правило, вызывают изменения спектра.

Экспериментальные исследования диагностических свойств электрических шумов и флуктуаций были проведены с использованием установки BANC TEST, дополненной оригинальной системой измерения электрических шумов с полосой пропускания 0,1-5 кГц и уровнем собственных шумов 1,5 мкВ.

Эксперименты позволили установить фликкер-шумовой характер электрических флуктуаций и шумов ТПТЭ $S(f) \sim 1/f^\gamma$, где $1 < \gamma < 3$ при различных режимах работы. На рисунке 11 представлены диагностические связи спектра электрических шумов и флуктуации с внутренними процессами ТПТЭ.

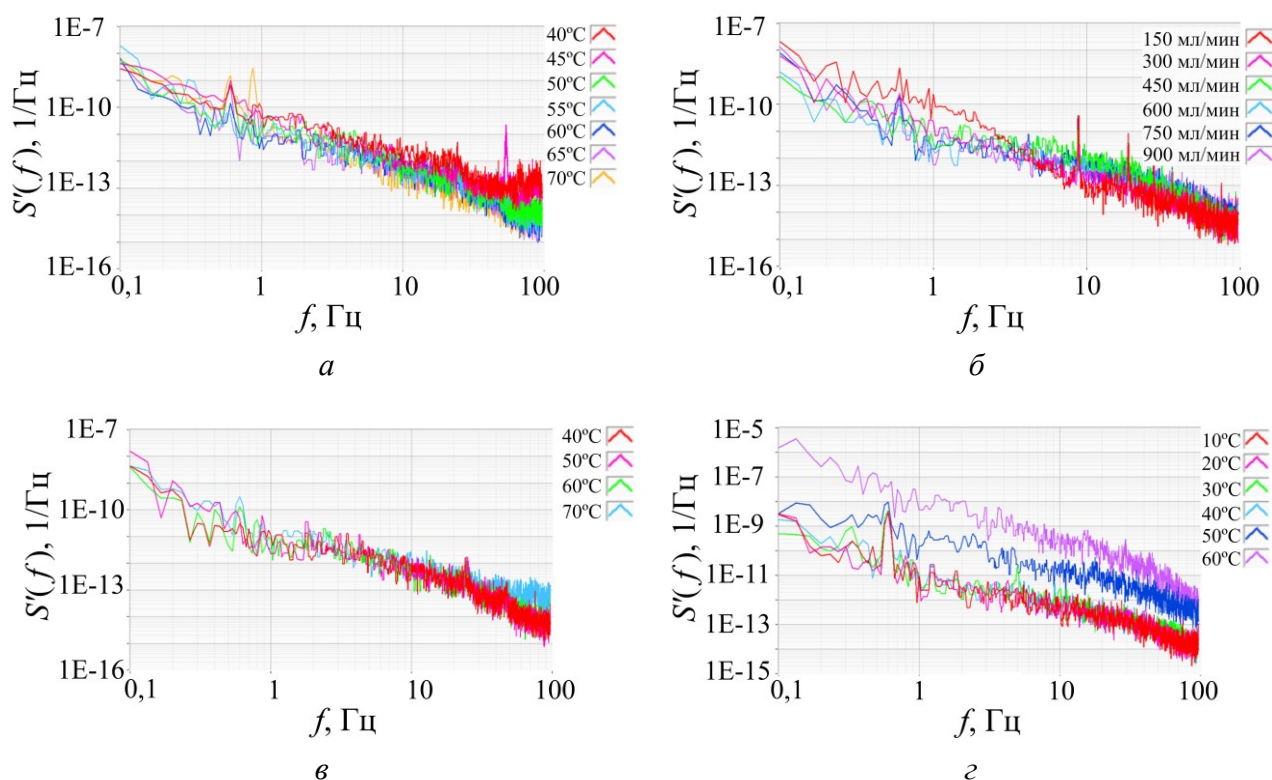


Рисунок 11 – Спектр микрофлуктуаций и шумов $S'(f)$ при изменении рабочих параметрах ТПТЭ: температуры ячейки TFC (а); массового расхода топлива QC (б); температур анодной (в) и катодной (г) систем увлажнения

Показана высокая чувствительность спектра к режимам увлажнения МЭБ ТПТЭ, что хорошо согласуется с теоретическими предположениями. Кроме того, влияние параметров, управляющих работой ТПТЭ, на флуктуационно-шумовые характеристики

различно. Так, повышение температуры катодной системы увлажнения приводит к сильному возрастанию интенсивности флуктуационно-шумовых процессов во всем диапазоне частот, а увеличение расхода окислителя Q_C приводит к росту высокочастотной области спектра. Влияние температуры T_{FC} ячейки ТПТЭ и других параметров на спектр имеет более сложный характер, который объясняется сложностью физико-химических процессов в ТЭ. Обобщая, можно сделать вывод, что процессы транспорта реагентов, особенности протекания электрохимической реакции и состояние мембраны влияют на уровень и спектральные характеристики флуктуационно-шумовых сигналов, на основе которых можно разработать технологии флуктуационно-шумовой диагностики (рисунок 12).

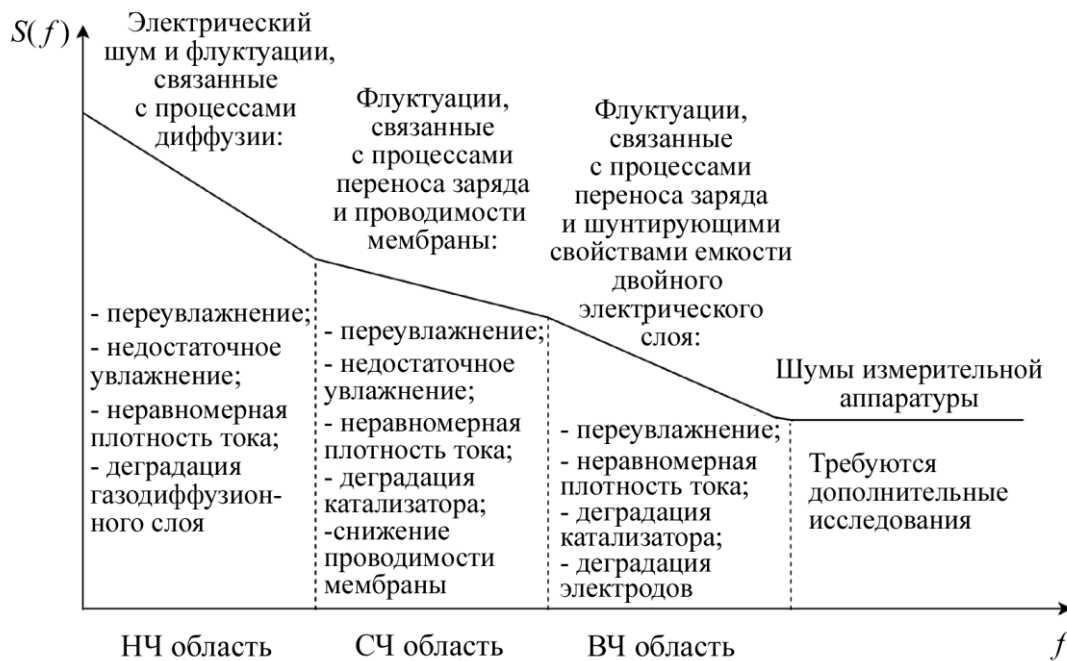


Рисунок 12 – Распределение механизмов возникновения ФШС по частотному спектру

Разработан спектральный метод флуктуационно-шумовой диагностики и его алгоритм:

- 1) измеряем флуктуационно-шумовой процесс $u(t)$ на нагрузке;
- 2) вычисляем оценку спектральной плотности $S_u(\omega)$ в информативной полосе частот $\omega_{\min} \ll \omega < \omega_{\max}$;
- 3) вычисляем отклонение амплитуды спектра $S_u(\omega)$ от номинального режима $S_{u0}(\omega)$;
- 4) осуществляем контроль по отклонению амплитуды спектра за коридор (полосу) заданных уровней;
- 5) верификация неисправностей по положению отклонений за коридор заданных уровней на частотной оси.

Предложен алгоритм обнаружения критических режимов увлажнения МЭБ:

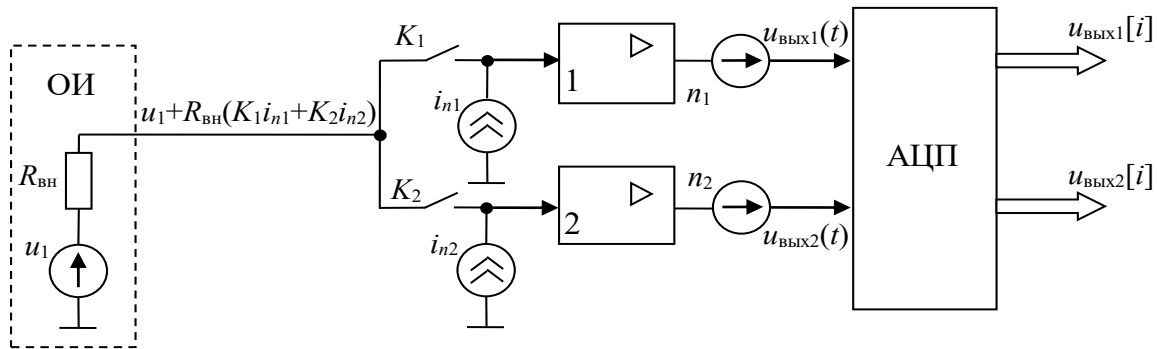
- 1) измерение ФШС ТПТЭ $u(t)$;
- 2) вычисление спектральных характеристик сигнала;
- 3) оценка нормированного СКЗ в двух диапазонах частот σ_V'' (1-10 Гц) и σ_V''' (10-100 Гц);

4) если $\sigma_V'' > \sigma_{\text{пор}}''$, переходим к п.5, иначе переходим к п.6; 5) если $\sigma_V''' > \sigma_{\text{пор}}'''$, то делаем вывод о переувлажненности МЭБ; 6) если $\sigma_V''' > \sigma_{\text{пор}}'''$, то делаем вывод о недостаточной увлажненности МЭБ. Здесь $\sigma_{\text{пор}}''$ и $\sigma_{\text{пор}}'''$ – предварительно заданные пороговые значения.

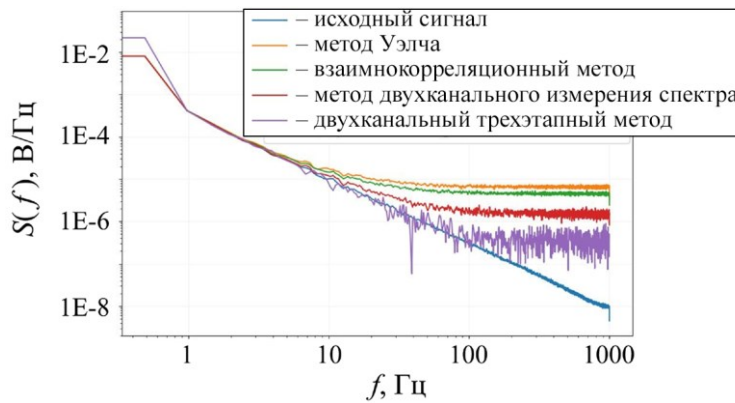
Основной проблемой аппаратной реализации предложенного метода флуктуационно-шумовой диагностики является влияние собственных шумов измерительной аппаратуры и наводок на точность оценки статистических характеристик. Для повышения точности оценки в условиях помех был предложен и разработан двухканальный трехэтапный метод измерения с компенсацией шумов входных каскадов измерительной аппаратуры (рисунок 13, а). Предложенный метод уточняет спектр ФШС на основе линейной комбинации:

$$S_{u_1}(f) = S_1(f) + S_2(f) - 0,25 S_{\Sigma}(f) - 0,75 S_{\Delta}(f), \quad (13)$$

где $S_1(f)$ и $S_2(f)$ – отдельные спектры каналов 1 и 2; $S_{\Sigma}(f)$ и $S_{\Delta}(f)$ – спектры суммарного и разностного сигналов.



а



б

Рисунок 13 – Функциональная схема двухканального измерения спектра с компенсацией шумов (а) и сравнительные оценки СПМ (б)

Численные оценки показывают высокую эффективность предложенного метода, позволяющего достигать уровня подавления собственных шумов измерительной аппаратуры до 15 дБ. Например, рисунок 13, б показывает, что при СКО шумов измерительной аппаратуры: n_1 – 0,5 мВ; n_2 – 0,3 мВ; $i_{n1}R_{вн}$ – 0,05 мВ; $i_{n2}R_{вн}$ – 0,1 мВ точность оценки СПМ измеряемого сигнала возрастает более, чем на порядок.

Предложена функция, эквивалентная режекции помех сетевой частоты и гармоник в частотной области путем обнаружения выбросов спектральных характеристик и исключению соответствующих им частотных отсчетов или заменой их на средние значения. Предложенная совокупность методик позволяет увеличить точность измерения среднеквадратического напряжения ФШС в диапазонах частот свыше 100 Гц более чем на 40 %, что позволяет расширить их информативный частотный диапазон.

Особыми диагностическими свойствами обладают квазипериодические флуктуации, поскольку их возникновение, как правило, связано с различными критическими режимами работы и неисправностями ТПТЭ. Следует отметить, что квазипериодические флуктуации КПФ имеют амплитуды порядка милливольт, что позволяет использовать простое измерительное оборудование. КПФ наиболее часто проявляются при работе с большими нагрузками. Поэтому анализ КПФ является перспективным средством диагностики процессов деградации ТПТЭ. Сложная природа КПФ требует специализированных подходов к обработке сигналов.

Обычный спектральный подход показал недостаточность для реализации контроля ТПТЭ по КПФ, поэтому был разработан метод контроля ТПТЭ на основе оригинального подхода Р.Р. Нигматуллина, использующего разложение Прони для квазипериодических сигналов. Соответствующее разложение Прони, адаптированное для флуктуационно-шумового сигнала $u(t)$, будет иметь вид:

$$u(t) = \bar{U} + U_0 \exp\left(\frac{\lambda t}{T_x}\right) + \sum_{k=1}^K \left[U_{c_k} \exp\left(\frac{\lambda t}{T_x}\right) \cos\left(\frac{2\pi k t}{T_x}\right) + U_{s_k} \exp\left(\frac{\lambda t}{T_x}\right) \sin\left(\frac{2\pi k t}{T_x}\right) \right]. \quad (14)$$

Соотношение (14), включающее в себя неизвестный набор амплитуд U_{c_k} и U_{s_k} и параметры: число мод K , экспоненциальный показатель λ и период T_x , должно описывать реальные КПФ. Параметры K , λ и T_x находятся путем идентификации по экспериментальным данным в предварительно определенных диапазонах, что уменьшает вычислительную сложность и увеличивает точность описания квазипериодического сигнала. Высокую диагностическую чувствительность при этом показали коэффициенты разложения $U_k = \sqrt{U_{c_k}^2 + U_{s_k}^2}$.

Анализ результатов 100-часовой серии измерений, представленной на рисунке 14, *а*, показывает сильное возрастание коэффициентов U_k после 60 часов работы с последующим плавным снижением. Момент резкого возрастания коэффициентов разложения Прони совпадает с 4%-ным уменьшением выработки электрической энергии батареей ТПТЭ (рисунок 14, *б*). Такое поведение коэффициентов позволяет сделать вывод, что коэффициенты U_k обладают информационными свойствами, позволяющими рассматривать их в качестве признаков контроля для обнаружения изменений физико-химических процессов.

На этом основании был предложен метод контроля для квазипериодических флуктуационных сигналов, состоящий из следующих шагов:

- 1) измеряется ФШС $u(t)$, содержащий квазипериодическую составляющую;
- 2) вычисляются по выражению (14) коэффициенты U_k разложения Прони;

3) вычисляется отклонение коэффициентов разложения Прони от номинального режима $\Delta_k = |U_k - U_{k \text{ пор}}|$;

4) осуществляется контроль по отклонению коэффициентов разложения Прони за коридор (полосу) заданных уровней $\Delta_k > \Delta_{k \text{ пор}}$.

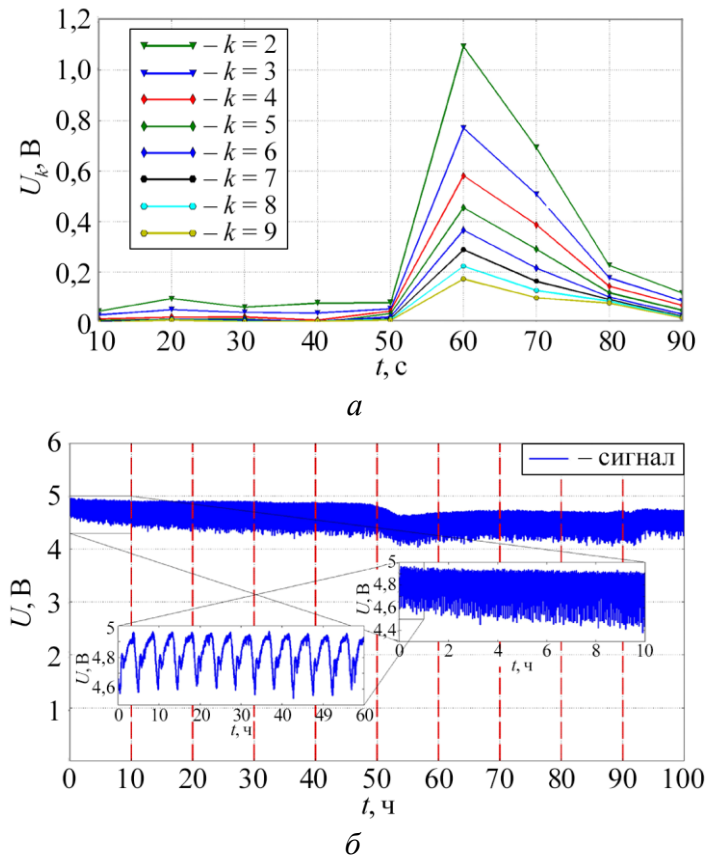


Рисунок 14 – Изменение коэффициентов разложения U_k для выбранной моды при изменении технического состояния (а) и соответствующие сигнал напряжения (б)

В главе 5 исследованы малосигнальные методы контроля и диагностики батарей ТПТЭ (БТПТЭ), являющихся основой большинства существующих энергетических систем. Цель исследований заключается в подтверждении применимости предложенных ранее методов для БТПТЭ.

Эксперименты были проведены в лаборатории *FCLab* (Бельфор, Франция) для БТПТЭ на основе 8 ячеек с номинальной мощностью 600 Вт производства *CEA* (*Commissariat à l'Énergie Atomique*), Гренобль (Франция). Особенность исследований – большая их продолжительность – более 500 часов (рисунок 15) для выявления деградационных процессов в полосе частот от 10^{-3} до 10^3 Гц.

Оценки спектра ФШС (рисунок 16) показывают его сложную фрактальную структуру вида $f^{-\alpha_i}$ с различными показателями $\alpha_i > 1$ на разных частотных участках. В логарифмическом масштабе явно выделяются три участка спектра:

- 1) низкочастотный участок с показателем наклона $\alpha_1 = 1,5$ при $f < 1$ Гц;
- 2) среднечастотный участок $1 \text{ Гц} < f < 10 \text{ Гц}$ со слабым спадом СПМ $\alpha_2 \approx 1$ и ярко выраженным пиком при $f = 1,6$ Гц;
- 3) высокочастотный участок с $\alpha_3 = 3,2$ ($f > 10$ Гц).

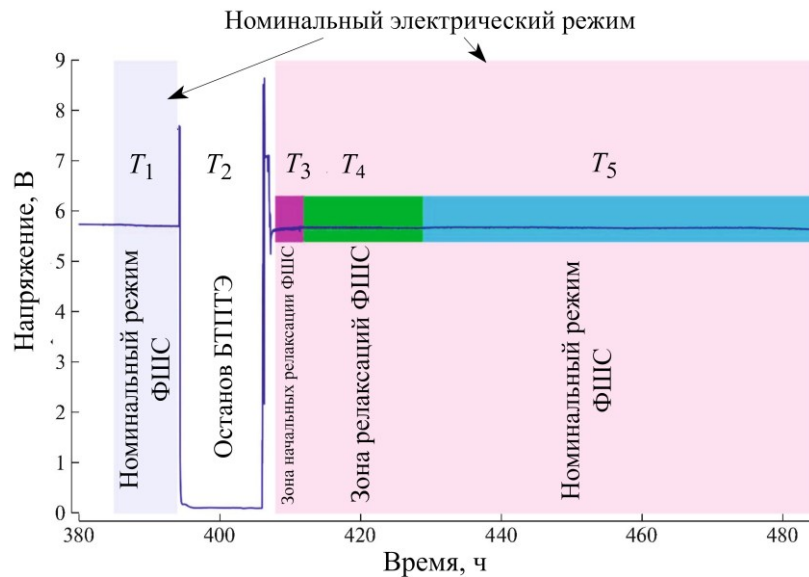
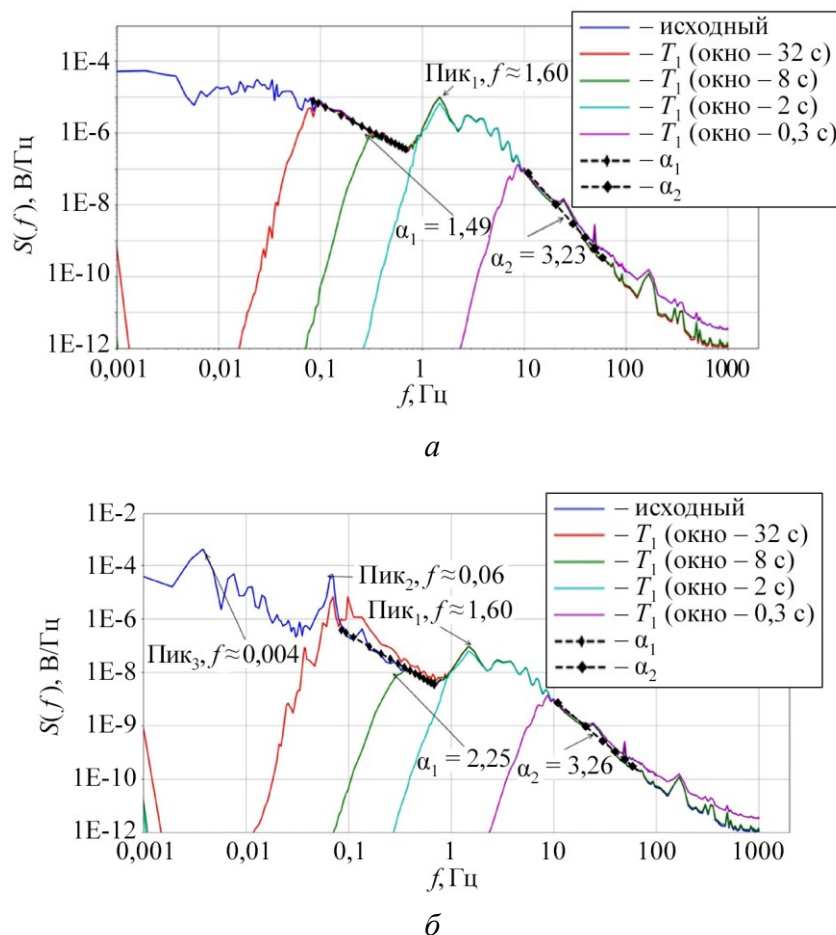


Рисунок 15 – Временные зоны экспериментальных измерений БТПТЭ

Рисунок 16 – Спектр ФШС для номинального режима работы T_1 (а) и после восстановления режима работы T_3 (б)

Установлено, что высокочастотные составляющие ФШС связаны с процессами, имеющими малые постоянные времени релаксации, например с процессами переноса заряда в каталитических слоях, а составляющие, относящиеся к диапазонам низких и средних частот, определяются более медленными процессами – массоперенос,

испарение и конденсация капель воды и т.д. Следует также отметить высокую стабильность характеристического пика на частоте 1,6 Гц, наличие которого может объясняться влиянием систем автоматического управления режимами работы.

Для решения задачи контроля и диагностики используется сравнение характеристик ФШС работающей БТПТЭ с условно эталонной. Начальный ($t < 394$ ч) номинальный участок T_1 с током 85 А принимался за эталон, а последующие сравнивались с ним. Такой подход показал, что после остановки БТПТЭ T_2 из-за нештатного прекращения подачи топлива (водорода), структура спектра ФШС T_3 осталась аналогична эталонной T_1 за исключением низкочастотного диапазона, в котором появились пики на частотах 0,004 Гц и 0,06 Гц (рисунок 16, б). При этом они исчезают в зоне T_2 . Поведение этих пиков объясняется медленными процессами восстановления прежнего режима работы батарей после вынужденной остановки. Здесь важным обстоятельством является то, что время релаксации, необходимое для полной стабилизации характеристик БТПТЭ, составило около 20 ч (рисунок 15), хотя время установления потенциала не превышает 0,5 ч. Это говорит о том, что на основе измерения флуктуации можно строить чувствительные инструменты для контроля и диагностики тонких особенностей физико-химических процессов ТПТЭ.

Схожие результаты были получены при исследовании статистических моментов разного порядка. Анализ нормированных моментов 2-го i_s , 3-го a_s и 4-го e_s порядков, полученных после устранения тренда для различных временных окон, показывает, что приостановка работы БТПТЭ изменяет характеристики ФШС с неподавленными низкочастотными составляющими при величинах окна более 8 с. Через 20 ч после установления рабочего режима БТПТЭ оценки моментов для окна в 32 с восстанавливаются до первоначального уровня. Восприимчивость к изменению режима работы коэффициентов асимметрии a_s и эксцесса e_s по сравнению с СКО (интенсивностью i_s), приведенным к среднему значению напряжения, выше в 2 – 3,5 раза.

На основе анализа подобных длительных измерений разработан метод контроля БТПТЭ по статистическим моментам ФШС, состоящий из четырех шагов:

- 1) измеряется флуктуационно-шумовой процесс $u(t)$ на нагрузке;
- 2) вычисляются параметры: интенсивность i_s , коэффициенты асимметрии a_s и эксцесса e_s для измерительного сигнала $u(t)$;
- 3) вычисляем отклонения параметров от их номинальных значений:
 $\Delta i_s = |i_s - i_{s \text{ ном}}|$; $\Delta a_s = |a_s - a_{s \text{ ном}}|$; $\Delta e_s = |e_s - e_{s \text{ ном}}|$;
- 4) осуществляется контроль по отклонениям моментов от номинальных значений
 $\Delta i_s > \Delta i_{s \text{ пор}}$; $\Delta a_s > \Delta a_{s \text{ пор}}$; $\Delta e_s > \Delta e_{s \text{ пор}}$.

Представленные впервые результаты [19, 21] экспериментального исследования ФШС БТПТЭ подтверждают их применимость для контроля и диагностики их режимов работы. Однако они не позволяют контролировать отдельные ячейки батареи. Локализация некорректно работающей ячейки возможна подключением к отдельным ячейкам.

Проведено исследование релаксационных процессов БТПТЭ, вызванных периодическим ступенчатым изменением тока нагрузки, в течение 50 часов.

Показано, что этот процесс в начальный отрезок времени, соответствующий области высоких частот, может быть описан экспоненциальной математической моделью и представлен эквивалентной RC -цепью первого порядка, включающей в себя емкость двойного слоя C , сопротивление мембраны R_M и сопротивление переноса заряда r_e . Параметры этой модели и эквивалентной цепи являются диагностическими признаками. Анализ результатов показывает, что релаксационные процессы зависят от положения рабочей точки на статической вольт-амперной характеристике и изменяются в процессе долговременной работы БТПТЭ. Наибольшее изменение при продолжительной работе демонстрируют амплитуда экспоненты U_1 и сопротивление переноса заряда r_e , относительное изменение которого при токе нагрузки 50 А достигает 50%. Такое поведение объясняется наличием деградационных процессов БТПТЭ, связанных с аккумуляцией воды в МЭБ.

Глава 6 посвящена разработке научно-методических основ интеллектуализации систем контроля и диагностики ТПТЭ. Установленные диагностические свойства импедансных, релаксационных и флуктуационно-шумовых процессов имеют сложную взаимосвязь с техническим состоянием и особенностями протекания физико-химических процессов ТПТЭ. Поскольку предложенные критерии контроля и диагностики имеют комплексный характер, их формализация в рамках классических подходов сложна. Для дальнейшего повышения надежности контроля и диагностики необходимо расширить вектор входной информации, для эффективной обработки которого предложено использовать технологии искусственного интеллекта. Разработанные методы контроля и диагностики могут при этом использоваться в качестве методологического ядра интеллектуальных средств, обеспечивая набор данных для предварительной конфигурации и обучения моделей.

В рамках диссертации решены две задачи: 1) контроль и диагностика; 2) краткосрочное и долговременное прогнозирование. Для нейросетевых методов решения этих задач применен следующий подход: 1) выбор, обоснование и формирование вектора входной обучающей информации (предварительная обработка/нормировка); 2) формирование требований к вектору выходных сигналов контроля, диагностики и прогноза; 3) выбор и обоснование структуры нейросети, адаптированной для решения задач контроля, диагностики и прогнозирования ТПТЭ; 4) разработка методики обучения на реальном топливном элементе и накопления обучающей выборки данных; 5) обучение и оптимизация структуры нейросети; 6) оценка характеристик интеллектуальных систем контроля, диагностики и прогнозирования. Дополнительное повышение надежности достигается за счет накопления информации в процессе эксплуатации ТПТЭ и дообучения нейросетей.

Общая структура такой системы представлена на рисунке 17. Вектор входной информации нейронной сети формируется на основе предварительно обработанных (подготовленных) импедансных, релаксационных и/или флуктуационно-шумовых характеристик, а также параметров, характеризующих текущие режимы работы ТПТЭ. Выходной сигнал нейронной сети используется для принятия контролирующих, диагностических или прогностических решений. Подготовка входных и дополнительная обработка выходных данных позволяют упростить нейросетевой алгоритм и повысить унификацию данных.

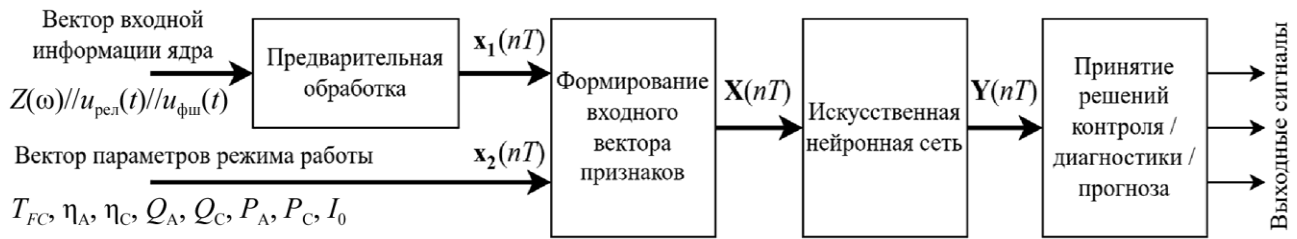


Рисунок 17 – Структура интеллектуальной системы диагностики ТПТЭ

На основе предложенной структуры интеллектуальной системы диагностики ТПТЭ было разработано несколько алгоритмов. Предложен нейросетевой алгоритм для оценки параметров электрической модели ТПТЭ по релаксационным характеристикам, вызванным модуляцией нагрузки. Набор данных для обучения нейронной сети формировался программой, написанной на языке Python 3.7. При формировании набора данных применялся диапазон изменения параметров, характерный для реально работающих ТПТЭ, используемых в лаборатории Института RPrime Университета города Пуатье (Франция). Набор включал в себя релаксационные характеристики с частотой дискретизации 5 кГц и длительностью 10 с для 10 000 различных режимов работы ТПТЭ. Поставленная задача была решена посредством классического многослойного перцептрона, оптимальная структура которого, определенная оптимизатором *Adam*, имеет следующие параметры: коэффициент отсеивания – 0,2; число эпох обучения – 8; число скрытых слоев – 6; число нейронов в слоях: 1000, 1300, 1300, 3000, 2000 и 2300.

Результат проверки работы обученной нейронной сети на тестовых данных для прогноза параметров электрической модели показал, что погрешность не превышает 2%. Высокая точность работы нейросетевого алгоритма идентификации параметров эквивалентной электрической схемы потенциально позволяет реализовывать эффективные средства диагностики технического состояния ТПТЭ в процессе их функционирования (рисунок 18).

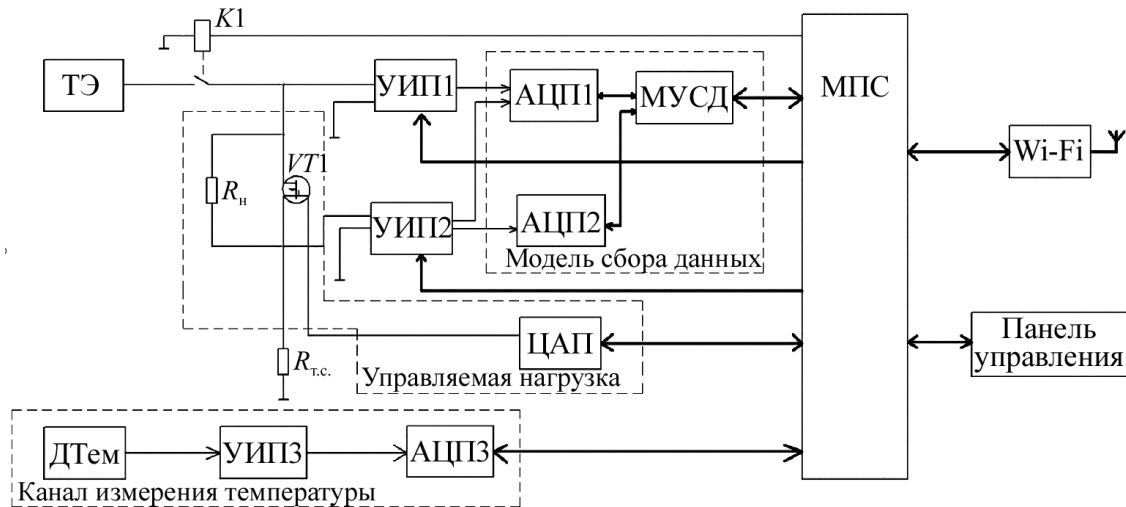


Рисунок 18 – Типовая функциональная схема нейросетевой системы диагностики ТПТЭ

Предложен метод прогнозирования режима работы БТПТЭ на основе рекуррентных нейронных сетей. Для обучения алгоритма на основе управляемых рекуррентных блоков (Gated Recurrent Units, GRU) использовались оптимизатор *Adam* и измерения релаксационных характеристик БТПТЭ, полученные при долговременных испытаниях в лаборатории Университета города Бельфор (Франция). Обученная нейронная сеть с тринадцатью входными сигналами и тремя скрытыми слоями по 598 элементов GRU в каждом обеспечивает точность прогноза свыше 93% при упреждении в 10 с (рисунок 19). Такие характеристики прогноза обеспечивают возможность корректировки рабочих параметров ТПТЭ для предотвращения развития критических режимов.

Достигнутая точность прогноза ($>93\%$) достаточна для начала практического внедрения, дальнейшее обучение данной модели возможно в процессе реальной эксплуатации по мере увеличения объема обучающей выборки.

Показана возможность прогнозирования критических режимов работы ТПТЭ на основе использования вейвлет-анализа электрических флуктуаций и шумов, поскольку он позволяет описывать нестационарное поведение ТПТЭ и обнаруживать изменения режимов работы на ранних этапах. Показана возможность прогнозирования провалов напряжения, связанных с избыточной аккумуляцией воды в МЭБ ТПТЭ, с упреждением до 50 с. В диссертации предложено применять коэффициенты вейвлет-анализа в качестве расширения входного обучающего вектора интеллектуальных систем прогнозирования технического состояния ТПТЭ.

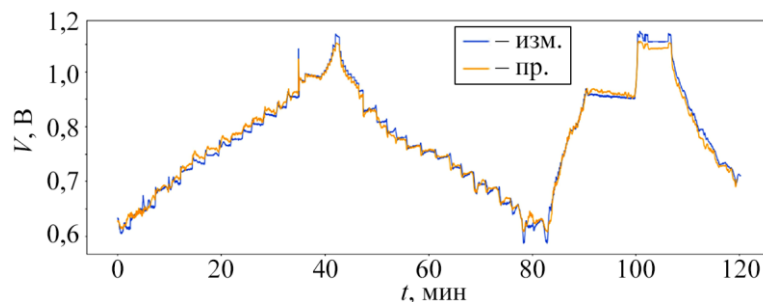


Рисунок 19 – Результаты прогноза нейронной сети с тринадцатью входными сигналами и при использовании 598 узлов в каждом слое

Предложено в перспективе для увеличения надежности диагностики и контроля ТПТЭ использовать не точечные датчики, а распределенные измерительные структуры.

Предложенные структуры позволяют измерять распределения физических полей внутри сложных пространственно-распределенных объектов, таких как мембранно-электродные блоки, при ограниченных возможностях подключения измерительной аппаратуры и минимизации влияния на рабочие процессы. Численные оценки показывают возможность восстановления пространственного распределения физических полей с погрешностью 0,6-4% при продолжительности измерений $10^{-2} - 10^{-5}$ с. Для электрохимических систем такие характеристики позволяют измерять ряд нестационарных тепловых или других типов физических полей с большими временами релаксации. Уменьшить сложность изготовления и алгоритмов обработки

сигналов позволяют оригинальные квазираспределенные резистивные датчики с сеточной и древовидной структурами, обеспечивающие погрешность менее 0,1%.

Разработаны модели оценки деградации и прогнозирования остаточного ресурса ТПТЭ по малосигнальным характеристикам. Показано, что параметры эквивалентной электрической схемы могут использоваться в качестве признаков для оценки степени деградации и прогнозирования остаточного ресурса в виде оценки времени до достижения параметрами эквивалентной электрической схемы критических значений:

$$r_e(t) = -\frac{RT}{2F} \frac{i_{0,a}/\alpha_a + i_{0,c}/\alpha_c}{(A_0 e^{-b_{A1}t} + A_1 e^{-b_{A2}t}) i_{loss,0} e^{b_{loss}t} + I(t)}, R_M(t) = \frac{R_{ion,0} e^{b_{ion}t} + R_0 + b_R t}{A_0 e^{-b_{A1}t} + A_1 e^{-b_{A2}t}};$$

$$R_D(t) = \frac{(4FP_{O2}/RTL_{GDL})(D_{O2,j} + b_D t)(b_{c,j} + b_B t)}{(4FP_{O2}/RTL_{GDL})(D_{O2,j} + b_D t)(A_0 e^{-b_{A1}t} + A_1 e^{-b_{A2}t}) - I(t)};$$

$$C_{dl}(t) = C_{dl0} \frac{A_0 e^{-b_{A1}t} + A_1 e^{-b_{A2}t}}{A_0 + A_1}.$$
(15)

Эффективная площадь активной поверхности электродов, уменьшающаяся в процессе работы ТПТЭ, может быть оценена на основе информационных свойств электрических шумов и флуктуаций:

$$S_I(f) = \left((A_0 + A_1) / (A_0 e^{-b_{A1}t} + A_1 e^{-b_{A2}t}) \right)^{\mu-1} S_{I,0}(f),$$
(16)

где $S_{I,0}(f)$ – СПМ электрических флуктуаций в начальный момент эксплуатации ТПТЭ. Установлено, что оценкой деградации ТПТЭ может служить соотношение между СПМ в начальный и текущий моменты эксплуатации:

$$A_{АП}(t) = A_{АП0} \left(S_{I,0}(f, 0) / S_I(f, t) \right)^{1/(\mu-1)},$$
(17)

где $A_{АП}$, $A_{АП0}$ – площади активной поверхности электродов в текущий и начальные моменты времени. Предложенные модели деградации основаны на статистических данных из ведущих научных журналов и позволяют уточнять прогноз в процессе измерений.

Предложена обобщенная структура встроенных систем диагностики и контроля, реализующих предложенные методы, основанные на импедансных и релаксационных характеристиках (рисунок 20, а), которая содержит: 1) систему управления и измерения рабочего режима (СУИРР); 2) канал измерения тока (КИТ); 3) канал измерения напряжения (КИН); 4) управляемую электрическую нагрузку (УЭН), подключаемую параллельно основной электрической нагрузке (ОЭН) и обеспечивающую формирование зондирующих сигналов; 5) микропроцессорную систему (МПС), обеспечивающую управление УЭН для формирования зондирующих сигналов, задание режимов работы ТПТЭ подачей управляющих сигналов СУРР, прием и обработку измерительных сигналов $i(t)$ и $u(t)$.

Типовая структура встроенной системы флуктуационно-шумовой диагностики и контроля во многом совпадает с рассмотренной, но в ней может отсутствовать блок УЭН (рисунок 20, б). Для упрощения требований к аппаратному обеспечению систем контроля и диагностики, а также расширения функциональных возможностей по использованию вычислительно сложных алгоритмов обработки сигналов, накопления и анализа большого объема статистических данных, а также повышения оперативности принятия решений контроля и диагностики предложена структура распределенной системы контроля и диагностики (рисунок 20, в).

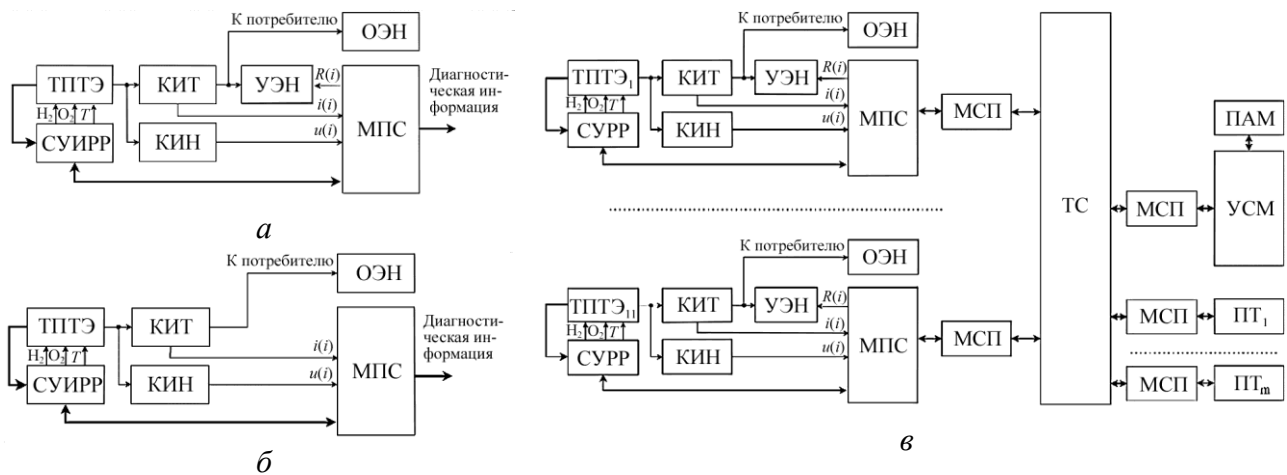


Рисунок 20 – Типовые структуры встроенных автоматизированных систем релаксационной (а) и флуктуационно-шумовой (б) диагностики, распределенной системы диагностики и контроля ТПТЭ (в)

Показано, что возникающие сетевые задержки обеспечивают возможность проведения диагностики в реальном масштабе времени. Предложенная структура позволяет строить распределенные интеллектуальные системы контроля и диагностики ТПТЭ произвольной сложности и производить накопление статистических данных для дообучения и повышения их точности.

3. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

Основным результатом данной работы является решение важной научно-технической проблемы – создание теории и техники флуктуационно-шумового и релаксационного контроля водородных твердополимерных топливных элементов (ТПТЭ) и разработка на их основе технологии нового класса методов маловозмущающего и оперативного контроля и диагностики.

Решены следующие задачи:

1. Аналитический обзор показал, что для расширения области применения источников электрической энергии на базе ТПТЭ требуется решить актуальную задачу создания маловозмущающих методов контроля и диагностики, обеспечивающих оперативное обнаружение неисправностей ТПТЭ и их критических режимов работы, а также формирование рекомендаций, минимизирующих влияние на эксплуатационные характеристики.

2. Предложены и разработаны нелинейная и линейная системные диагностические модели ТПТЭ, в основу которых положены нелинейные связи между входными и выходными величинами и матричные соотношения для малых возмущений, обеспечивающих малоинвазивность контроля и диагностики.

Разработанная научно-методологическая основа базируется на:

а) применении маловозмущающего входного воздействия в виде гармонического сигнала или динамического скачка и использовании соответствующих откликов в форме импеданса или релаксационного процесса;

б) использовании флуктуаций и шумов на электрической нагрузке, являющихся неизбежными атрибутами режимов работы ТПТЭ.

Исследование информационных свойств этих сигналов, измеренных с высокой точностью, является базисом для разработки перспективных систем контроля и диагностики (СКД) ТПТЭ. Показана эквивалентность диагностических свойств импедансных и релаксационных методов. Преимуществом предложенного релаксационного метода является повышение оперативности получения диагностической информации в $\eta = 2 - 10$ раз;

Предложена и разработана флуктуационно-шумовая электрическая модель ТПТЭ, содержащая электрические элементы с флуктуирующими параметрами и источники электрических тепловых, дробовых и фликкер-шумов. Показано, что статистические характеристики флуктуационно-шумовых сигналов (ФШС) содержат диагностическую информацию для создания СКД.

Доказаны диагностические возможности линейной электрической модели для идентификации параметров, определяющих скорость электрохимической реакции, процессы диффузии, проводимость полимерной мембраны и емкость двойного электрического слоя. Предложена модификация элемента Варбурга линейной модели эквивалентной схемой Кауэра, позволяющая существенно сократить вычислительную сложность модели при обеспечении заданной точности в полосе рабочих частот. Обе модели служат основой предложенных методов импедансной и релаксационной диагностики режимов работы ТПТЭ, включающих в себя этапы измерения характеристик, идентификации параметров модели и формирования диагностической или прогностической информации.

3. Разработаны автоматизированные стенды и методики для экспериментального исследования диагностических свойств импедансных, релаксационных и флуктуационно-шумовых характеристик как отдельных ячеек, так и батарей ТПТЭ. Стенды позволяют управлять и контролировать электрические режимы и режимы подачи, увлажнения и поддержания давления водорода и кислорода, температуры ТПТЭ, а также измерять электрические флуктуационно-шумовые, импедансные и релаксационные характеристики. Погрешность задания и регулирования неэлектрических параметров режима работы ТПТЭ не превышает 2%. Собственные шумы электрических средств измерения, приведенные ко входу, не более 5 мкВ в диапазоне частот до 10 кГц.

Предложена методика оценки частотных характеристик импеданса ТПТЭ по скачкообразным возмущениям электрической нагрузки, позволяющей достичь погрешностей оценки амплитудно- и фазо-частотных характеристик 1,6 и 3,8% соответственно. Методика позволяет в 4-10 раз повысить оперативность оценки импеданса ТПТЭ и упростить диагностическое оборудование.

Предложены методики оценки параметров электрической модели непосредственно по временному отклику на скачкообразное возмущение тока или величины нагрузки. Показана идентификация параметров электрической модели на основе аппроксимации моделей переходной характеристики. Такая вычислительная процедура позволяет эффективно реализовать методику на микроконтроллерах общего назначения.

4. Предложены методы и средства получения диагностических флуктуационно-шумовых сигналов, генерируемых в процессе работы ТПТЭ. Предложена методика компенсации влияния электромагнитных сетевых помех, позволяющая уменьшить до 40% погрешность измерения СПМ шумов в полосе 0,1-1 кГц.

Проведено теоретическое исследование механизмов флуктуаций и шумов ТПТЭ и их связь с диагностическими свойствами. Количественно показано, что неравномерность плотности тока протонообменной мембраны приводит к изменению фликкер-шумового спектра. Исследованы механизмы влияния блокировки поверхности мембранно-электродного блока, водородного и кислородного голодания, а также динамики процессов конденсации и испарения капель воды в мембранно-электродном блоке на спектр электрического шума, которые положены в основу предложенной флуктуационно-шумовой диагностики.

Экспериментальные исследования электрических флуктуаций и шумов в различных режимах работы подтвердили возможность использования флуктуационно-шумовых характеристик для контроля и диагностики отдельных ячеек и батарей ТПТЭ. Цифровой обработкой и анализом экспериментальных данных показаны: 1) фликкер-шумовой характер электрических флуктуаций и шумов; 2) диагностические связи электрических флуктуаций и внутренних процессов ТПТЭ; 3) возможность оценки процессов деградации.

5. Впервые проведены системные и продолжительные экспериментальные исследования флуктуационно-шумовых характеристик батарей ТПТЭ. Получена статистически значимая база экспериментальных данных и характеристик флуктуационных и шумовых процессов ТПТЭ и их батарей.

Для реализации флуктуационно-шумовой диагностики предложены четыре подхода, основанные на оценках: 1) спектральных характеристик; 2) моментов высокого порядка; 3) коэффициентов ряда Прони; 4) вейвлет-разложений. Подходы имеют различные информативность и требования к аппаратно-программным средствам.

Предложен новый подход к количественному описанию флуктуационных и шумовых сигналов ТПТЭ на основе последовательности ранжированных амплитуд, позволяющий повысить чувствительность к дрейфу флуктуационно-шумовых характеристик при деградации.

На основе экспериментальных исследований разработаны следующие методики:

- 1) обнаружения критических режимов увлажнения мембранно-электродного блока;
- 2) детектирования неравномерной плотности тока в мембранно-электродном блоке;
- 3) описания квазипериодических флуктуаций и получения диагностической информации по разложению Прони;
- 4) оценки и прогнозирования технического состояния ТПТЭ на основе вейвлет-анализа;
- 5) использования моментов высокого порядка для исследования деградации ТПТЭ;
- 6) использования параметрического представления линейной модели для решения задач прогнозирования деградации ТПТЭ.

6. Предложены методические основы построения алгоритмического, программного и аппаратного обеспечения СКД ТПТЭ, реализующие предложенные импедансные, релаксационные и флуктуационно-шумовые методы. Разработаны модели деградации параметров линейной модели ТПТЭ, которые могут уточняться в процессе накопления статистики деградации конкретных элементов. Указанные модели деградации могут использоваться для прогнозирования эксплуатационных характеристик и остаточного ресурса ТПТЭ.

Разработан трехэтапный двухканальный метод измерения спектра электрических флуктуаций и шумов с компенсацией собственных токовых и потенциальных шумов измерительной аппаратуры. Этот метод позволяет на порядок расширить частотный диапазон измерения спектра фликкер-шумовых сигналов.

Показана эффективность применения клиент-серверных систем распределенного контроля и диагностики для повышения оперативности принятия решений, а также обеспечения накопления статистических данных для обучения искусственных нейронных сетей. Разработаны типовые структуры систем управления рабочими режимами, контроля и диагностики ТПТЭ в локальном и распределенном исполнении.

Разработаны научно-методические основы интеллектуализации контроля и диагностики ТПТЭ на основе искусственных нейронных сетей. Предложено использовать импедансные, релаксационные и флуктуационно-шумовые данные в качестве входной обучающей информации. Проведен сравнительный анализ типов и структур нейронных сетей для контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы ТПТЭ. Из них по критерию надежности диагностики и простоты реализации выбран многослойный перцептрон. Показано, что структура, содержащая менее 11000 нейронов, образующих шесть скрытых слоев, позволяет оценивать параметры электрической модели по релаксационным характеристикам с погрешностью менее 2%. Для решения задачи технического контроля ТПТЭ и диагностики неисправностей полученные нейросетевые оценки параметров могут подаваться на пороговые устройства, величины которых выбираются в зависимости от режимов работы.

Прогнозирование режимов работы и оценка остаточного ресурса ТПТЭ осуществляются на основе модели деградации параметров. Процедура прогноза обеспечена дополнительной входной информацией о режимах работы ТПТЭ и применением рекуррентной нейронной сети, позволяющей обеспечить прогноз критических режимов работы с упреждением около 10 секунд с надежностью свыше

93%. Надежность прогноза улучшается в процессе работы по мере накопления обучающей выборки в процессе ее функционирования.

Предложенные решения могут служить основой для разработки перспективных интеллектуальных систем оперативного контроля, диагностики и прогнозирования режимов работы ТПТЭ.

4. СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи в журналах, включенных в перечень ВАК РФ по специальности 2.2.8:

1. *Денисов, Е.С.* Оценка возможности реализации распределенных систем диагностики водородных топливных элементов с использованием локальных и глобальных телекоммуникационных сетей / Е.С. Денисов, Р.Р. Енилиев, Н.Р. Гайсин и др. // Интеллектуальные системы в производстве. – 2024. – Т. 22. – № 1. – С. 4-10. (K2)
2. *Денисов, Е.С.* Оценка влияния собственных шумов измерительной аппаратуры при измерении импеданса водородных топливных элементов на основе широкополосных зондирующих сигналов / Е.С. Денисов, Г.В. Никишина, К.В. Коньков // Южно-Сибирский научный вестник. – 2024. – №2(54). – С. 33-39. (K2)
3. Особенности реализации метода контроля технического состояния литиевых источников тока на основе анализа релаксационных процессов, вызванных изменением нагрузки / *Е.С. Денисов, Г.В. Никишина, Р.Р. Енилиев и др.* // Контроль. Диагностика. – 2023. – Т. 26. – № 7(301). – С. 36-43. (K1)
4. *Денисов, Е.С.* Нейросетевая система релаксационной диагностики водородных топливных элементов / Е.С. Денисов, Н.Р. Гайсин, А.Р. Хаирова // Южно-Сибирский научный вестник. – 2023. – № 1(47). – С. 16-22. (K2)
5. *Денисов, Е.С.* Повышение точности оценки параметров электрического шума для систем диагностики водородных топливных элементов / Е.С. Денисов // Вестник Казан. гос. техн. ун-та им. А.Н. Туполева. – 2022. – Т. 78. – № 1. – С. 86-91. (K2)
6. *Денисов, Е.С.* Система измерения электрохимического импеданса водородных топливных элементов на основе широкополосных зондирующих сигналов / Е.С. Денисов // Вестник Казан. гос. техн. ун-та им. А.Н. Туполева. – 2022. – Т. 78. – № 1. – С. 92-98. (K2)
7. *Денисов, Е.С.* Идентификация параметров электрической модели электрохимических источников тока на основе анализа переходных процессов, вызванных изменениями нагрузки / Г.В. Никишина, Т.П. Никишин, Е.С. Денисов // Вестник Казан. гос. техн. ун-та им. А.Н. Туполева. – 2022. – Т. 78. – № 3. – С. 121-128. (K2)
8. *Денисов, Е.С.* Схемотехническая реализация квазираспределенного РС датчика с древовидной структурой и особенности его применения / Е.С. Денисов, Ю.К. Евдокимов, И.Д. Шафигуллин // Приборы и системы. Управление, контроль, диагностика. – 2022. – № 8. – С. 6-14. (K1)

9. *Денисов, Е.С.* Диагностика электрохимических источников тока на основе анализа переходных процессов, вызванных изменениями нагрузки / Г.В. Никишина, Е.С. Денисов // Вестник Казан. гос. техн. ун-та им. А.Н. Туполева. – 2021. – Т. 77. – № 2. – С. 74-81. (K2)

10. *Денисов, Е.С.* Контроль и прогнозирование критических режимов работы водородных топливных элементов в процессе эксплуатации на основе искусственных нейронных сетей / Е.С. Денисов, Н.Р. Гайсин, Т.П. Никишин и др. // Приборы и системы. Управление, контроль, диагностика. – 2021. – № 12. – С. 11-16. (K1)

11. *Денисов, Е.С.* Квазираспределенный резистивный датчик с древовидной структурой / Е.С. Денисов, И.Д. Шафигуллин, Ю.К. Евдокимов // Автометрия. – 2021. – Т. 57. – № 2. – С. 117-121. (Индексируется в Scopus, Q3). (K1)

12. *Денисов, Е.С.* Релаксационные процессы батарей твердополимерных водородных топливных элементов и оценка их диагностических свойств / Т.П. Никишин, Е.С. Денисов, Н.А. Адьютантов // Приборы и системы. Управление, контроль, диагностика. – 2020. – № 7. – С. 1-12. (K1)

13. *Денисов, Е.С.* Исследование диагностических возможностей вейвлет-преобразования для анализа электрических флуктуаций водородного топливного элемента / О.В. Шиндор, Е.С. Денисов, Ю.К. Евдокимов // Вестник Казан. гос. техн. ун-та им. А.Н. Туполева. – 2013. – № 4. – С. 120-124. (K2)

14. *Денисов, Е.С.* Построение систем контроля и диагностики водородного топливного элемента на основе наблюдения его электрических флуктуаций и шумов // Е.С. Денисов, Ю.К. Евдокимов // Вестник Казан. гос. техн. ун-та им. А.Н. Туполева. – 2011. – № 1. – С. 47-54. (K2)

15. *Денисов, Е.С.* Прогнозирование режимов работы водородного топливного элемента на основе вейвлет-анализа / О.В. Шиндор, Е.С. Денисов, Ю.К. Евдокимов // Нелинейный мир. – 2011. – Т. 9. – № 12. – С. 813-817. (K2)

16. *Денисов, Е.С.* Электрический шум водородного топливного элемента и исследование его диагностических свойств / Ю.К. Евдокимов, С.А. Мартемьянов, Е.С. Денисов // Нелинейный мир. – 2009. – Т. 7. – № 9. – С. 706-712. (K2)

17. *Денисов, Е.С.* Нелинейная и линейная электрические модели водородного топливного элемента и идентификация его параметров / Е.С. Денисов // Нелинейный мир. – 2008. – Т. 6. – № 8. – С. 81-85. (K2)

Статьи в изданиях, входящих в международные наукометрические базы Scopus / WoS, приравняемые к категории K1 журналов, рекомендованных ВАК РФ:

18. *Denisov, E.S.* Small-Signal Electrical Model of PEM Fuel Cell / E.S. Denisov // Theoretical Foundation of Chemical Engineering. – 2024. – Pp. 1-6. (K1)

19. Generation of Statistical Descriptors for Running PEM Fuel Cell Stack by Means of Long-Time Electrochemical Noise Measurements / A. Thomas, N. Adiyantov, E. Denisov, et al. // Nanobiotechnology Reports. – 2021. – Vol. 16. – №. 2. – Pp. 222-230. (K1)

20. *Denisov, E.S.* One-dimensional continuously distributed sensors for thermophysical fields: method of measurement, model, and numerical algorithm / Yu.K. Evdokimov, E.S. Denisov, L.Y. Fadeeva // Measurement. – 2021. – Vol. 186. – P. 110082. (K1)

21. Electrochemical noise analysis of a PEM fuel cell stack under long-time operation: noise signature in the frequency domain / S. Martemianov, A. Thomas, *E. Denisov*, et al. // Journal of Solid State Electrochemistry. – 2020. – Vol. 24. – №. 11. – Pp. 3059-3071. (K1)

22. Lithium battery transient response as a diagnostic tool / *E. Denisov*, R. Nigmatullin, Y. Evdokimov, et al. // Journal of Electronic Materials. – 2018. – Vol. 47. – № 8. – Pp. 4493-4501.

23. Electrochemical noise as a diagnostic tool for PEMFC / *E.S. Denisov*, Y.K. Evdokimov, S. Martemianov, et al. // Fuel Cells. – 2017. – Т. 17. – №. 2. – С. 225-237.

24. Spectral method for PEMFC operation mode monitoring based on electrical fluctuation analysis / *E. Denisov*, Yu.K. Evdokimov, R.R. Nigmatullin, et al. // Scientia Iranica. – 2017. – Т. 24. – №. 3. – С. 1437-1447. (K1)

25. New approach for PEMFC diagnostics based on quantitative description of quasi-periodic oscillations / R.R. Nigmatullin, S. Martemianov, *E. Denisov*, et al. // International Journal of Hydrogen Energy. – 2016. – V. 41. – №. 29. – Pp. 12582-12590. (K1)

Статья в журнале, включенном в перечень ВАК по смежным специальностям:

26. *Денисов, Е.С.* Оценка диагностических свойств электрического шума водородного топливного элемента / *Е.С. Денисов, А.Ш. Салахова, Н.А. Адьютантов, Ю.К. Евдокимов* // Нелинейный мир. – 2017. – Т. 15. – № 1. – С. 71-77. (K2)

Патенты и иные объекты интеллектуальной собственности:

27. Патент РФ №2791425 Квазираспределенный термоанемометрический датчик для измерения распределения скорости потока газа: опубл. 07.03.2023 / *Е.С. Денисов, И.Д. Шафигуллин, Ю.К. Евдокимов*. – 14 с.

28. Патент РФ №2787301 Способ определения нестационарного теплового потока: опубл. 09.01.2023 / *Ю.К. Евдокимов, Л.Ю. Фадеева, И.Д. Шафигуллин, Е.С. Денисов*. – 16 с.

29. Патент РФ №2787300 Способ определения нестационарного теплового потока: опубл. 09.01.2023 / *Ю.К. Евдокимов, Л.Ю. Фадеева, И.Д. Шафигуллин, Е.С. Денисов*. – 11 с.

30. Патент РФ №2766991 Квазираспределенный резистивный датчик и способ измерения распределенных параметров физических величин на его основе: опубл. 16.03.2022 / *Денисов Е.С., Шафигуллин И.Д., Евдокимов Ю.К.* – 15 с.

31. Патент РФ №2753085 Способ оценки технического состояния электрохимического источника тока и устройство, его реализующее: опубл. 11.08.2021 / *Денисов Е.С., Никишина Г.В.* – 19 с.

32. Патент РФ №2739719 Способ определения концентрации газа Евдокимов Ю.К., Фадеева Л.Ю., *Денисов Е.С.* // 28.12.2020. Заявка № 2020126167 от 03.08.2020.

33. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2023613458 (15.02.2023) Программа для автоматизированных измерений электрического импеданса // *Е.С. Денисов, И.Д. Шафигуллин*. – №2023612455, Заявл. 13.02.2023.

34. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2022663898 (21.07.2022) Программное обеспечение для обучения нейросетевого алгоритма идентификации параметров

эквивалентной электрической схемы // *Е.С. Денисов, А.Р. Хаирова, Н.Р. Гайсин.* – №2022662479, Заявл. 06.07.2022.

35. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2021660199 (23.06.2021) Программный модуль для оценки параметров модели переходного процесса электрохимического источника тока при неизвестном моменте скачкообразного изменения сигнала / *Е.С. Денисов.* – №2021618892, Заявл. 10.06.2021.

36. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2021667719 (02.11.2021) Программа для формирования набора данных для обучения нейросетевых алгоритмов диагностики электрохимических источников тока по переходным характеристикам / *Е.С. Денисов, Г.В. Никишина, А.Р. Хаирова и др.* – №2021666702, Заявл. 25.10.2021.

37. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2020664715 (18.11.2020) Программа для измерения параметров модели второго порядка переходной характеристики электрохимических аккумуляторов / *Е.С. Денисов, Г.В. Никишина.* – №2020619251, Заявл. 10.08.2020.

38. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2020662997 (21.10.2020) Программа оценки частотных характеристик импеданса электрохимической системы по переходным характеристикам / *Е.С. Денисов, Г.В. Никишина.* – №2020619142, Заявл. 10.08.2020.

39. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2020619992 (26.08.2020). Программа для исследования трендов параметров модели водородных топливных элементов // *Т.П. Никишин, Е.С. Денисов.* – № 2020619165, Заявл. 10.08.2020.

40. Св-во гос. рег. прогр. для ЭВМ №2011617356 (21.09.2011). Программа оценки оптимальной величины порога для целей флуктуационно-шумовой диагностики водородного топливного элемента / *Е.С. Денисов, Ю.К. Евдокимов.* – №2011617356, Заявл. 21.07.2011.

Монографии:

41. *Евдокимов, Ю.К.* Распределенные измерительные среды и системы. Фрактальная обработка сигналов: коллективная монография / *Ю.К. Евдокимов, Р.Р. Нигматуллин, Е.С. Денисов.* – М.: Физматлит. – 2024. – 432 с.

42. *Nigmatullin, R.R.* New methods of complex systems inspection: Comparison of the ADC device in different operating modes / *R.R. Nigmatullin, Yu.K. Evdokimov, E.S. Denisov, W. Zhang* // *Computational problems in science and engineering.* – Springer, Cham, 2015. – Pp. 187-204.

43. *Евдокимов, Ю.К.* Фрактальный анализ флуктуаций и статистической динамики для количественной оценки сложных систем / *Ю.К. Евдокимов, Е.С. Денисов, Д.В. Шахтурин* // *Динамические явления в сложных системах: коллективная монография.* – Казань: Изд-во МОН РТ, 2011. – С. 103-126.

44. *Денисов, Е.С.* Методы фрактальной геометрии и фрактальных процессов в задачах анализа и диагностики сложных систем / *Ю.К. Евдокимов, Е.С. Денисов, Д.В. Шахтурин* // *Фракталы и дробные операторы: коллективная монография.* – Казань: ФЭН, 2010. – Гл. 3. – С. 191-251.

Формат 60x84 1/16. Бумага офсетная. Печать цифровая.
Усл. печ. л. 2,21. Тираж 100 экз. Заказ Д47.

Издательство КНИТУ-КАИ
420111, Казань, К. Маркса, 10