

고분자 전해질 연료전지 예지 진단 기술

이원용¹ · 김민진^{1,2,†} · 오환영¹ · 손영준^{1,2} · 김승곤¹

¹한국에너지기술연구원 연료전지연구실, ²과학기술연합대학원대학교 신에너지 및 시스템 기술

A Review on Prognostics of Polymer Electrolyte Fuel Cells

WON-YONG LEE¹, MINJIN KIM^{1,2,†}, HWANYEONG OH¹, YOUNG-JUN SOHN^{1,2}, SEUNG-GON KIM¹

¹Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Energy Research, 152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34129, Korea

²Department of Advance Energy and System Technology, Korea University of Science and Technology, 217 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34113, Korea

†Corresponding author :
minjin@kier.re.kr

Received 29 May, 2018

Revised 6 July, 2018

Accepted 31 August, 2018

Abstract >> Although fuel cell systems have advantages in terms of electric efficiency and environmental impact compared with conventional power systems, fuel cell systems have not been deployed widely due to their low reliability and high price. In order to guarantee the lifetime of 10 years, which is the commercialization goal of Polymer electrolyte fuel cells (PEFCs), it is necessary to improve durability and reliability through optimized operation and maintenance technologies. Due to the complexity of components and their degradation phenomena, it's not easy to develop and apply the diagnose and prognostic methodologies for PEFCs. The purpose of the paper is to show the current state on PEFC prognostic technology for condition based maintenance. For the prognostic of PEFCs, the model driven method, the data-driven, and the hybrid method can be applied. The methods reviewed in this paper can contribute to the development of technologies to reduce the life cycle cost of fuel cells and increase the reliability through prognostics-based health management system.

Key words : Polymer electrolyte fuel cell(고분자 전해질 연료전지), Prognostics(예지 진단), Model driven method(모델 기반 방식), Data-driven method(자료 기반 방식), Remaining useful life(잔여 수명)

1. 서론

에너지문제와 환경문제를 해결하기 위하여 전 세계적으로 청정에너지의 보급이 확대되고 있으며 연료전지의 보급도 지속적으로 증대되고 있다. 2015년

연료전지 시스템 시장은 1조 억 정도였으며 2030년대에는 50조원 정도로 확대될 것으로 예상되고 있다¹⁾. 한국도 기후변화 대응과 신산업창출을 위하여 신재생에너지의 보급이 정책적으로 지원되고 있으며 태양광, 바이오 에너지기술 등과 더불어 기후변화 대

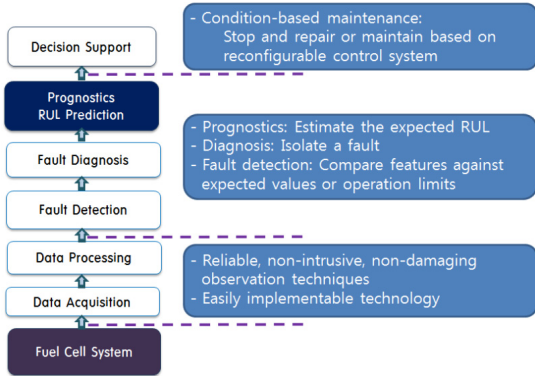


Fig. 1. Architecture of condition-based maintenance

응 6대 핵심기술의 하나로 연료전지가 집중적으로 연구 개발되고 있다²⁾.

연료전지는 수소 또는 화학연료로부터 개질된 수소가 포함된 연료의 화학에너지를 직접 전기에너지로 전환시키는 전기화학 장치로 고효율의 청정에너지 기술이다³⁻⁵⁾. 고분자 전해질연료전지(polymer electrolyte fuel cell, PEFC)는 일반적으로 100℃ 이하의 저온에서 작동되기 때문에 고온 연료전지에 비하여 물 관리에 어려움이 있지만 빠른 시동성과 높은 동력밀도의 장점으로 자동차와 주택 그리고 소형 건물용의 열병합 발전에 가장 적합하게 적용되고 있다⁶⁻⁸⁾.

연료전지 시스템이 제공할 수 있는 경제적, 환경적 이익으로 인하여 다양한 분야로의 적용 연구가 진행되고 있지만, 상용화를 저해하는 문제가 여전히 남아 있으며 그중 하나가 셀 구성 요소의 내구성이다. 초기 제작비용과 더불어 낮은 내구성으로 인한 스택 교체 등으로 인하여 유지비용이 많이 들어가기 때문에 기존 동력기관에 비하여 수명주기 운영비 측면에서 경쟁력이 뒤떨어지고 있다⁹⁻¹²⁾. 일반적으로 발전설비의 수명은 10년 이상이지만 지금까지 연료전지의 수명은 일부 시스템을 제외하고는 이에 미치지 못하고 있다¹³⁾. 2015년 기준 자동차용 PEFC의 평균 수명은 약 3,900시간 정도로 목표를 미달하고 있다¹⁴⁾. 미국 DOE와 일본 NEDO의 경우 수명 10년을 기준으로 연료전지 자동차에서는 최소 5,000시간 그리고 발전 분야에서는 최소 10만 시간을 목표로

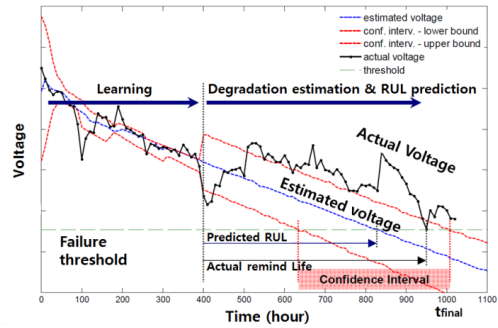


Fig. 2. Learning and degradation estimation, and RUL prediction¹³⁾

제시하고 있다¹⁵⁻¹⁷⁾.

이러한 장기 내구성 문제의 주요 원인은 촉매, 전해질 그리고 기체확산층(GDL) 등 스택 요소의 열화이다¹¹⁻¹³⁾. 내구성 향상을 통하여 수명을 향상시키기 위해서는 주요 부품의 설계 및 제조 기술 개선과 더불어 운영 및 유지 보수 기술의 최적화가 병행되어야 한다.

일반적으로 시스템의 일부에 발생한 작은 오류가 증대한 시스템 전체의 고장으로 파급될 수 있으며, 특히 연료전지의 경우 구조적으로 운전 장치의 사소한 고장이나 단위전지의 결함이 스택 전체에 영향을 입혀 손상을 입힐 수가 있다. 스택은 신뢰성 공학 측면에서 단위전지들이 직렬로 연결된 구조로서 스택 신뢰성은 각 단위셀의 신뢰성을 곱한 값이기 때문에 셀 수가 증가할수록 고장에 취약해질 수 있다¹⁸⁾. 만일 고장이 초기 단계에서 검출되거나 예측될 수 있다면 심각한 손상으로 발전하기 전에 시스템을 정비할 수 있을 것이다. 이에 본 논문에선 지금까지 연구된 연료전지의 건전성 유지(health management)를 위하여 필요한 고장 예지 진단(예진) 기술을 분석하였다. 건전성 유지를 위한 고장 진단과 예진 기술은 안정성과 신뢰성이 중요한 우주항공과 원자력발전분야 등에서 시작되어 최근 ICT의 기술의 진보와 더불어 제조 및 엔지니어링 시스템에 적용되고 있다¹⁹⁻²⁵⁾. 신재생에너지 분야에서도 풍력터빈의 모니터링과 진단 연구가 수행되었다^{26,27)}.

고장이 초기 단계에서 감지되거나 예측될 수 있다

면 고장이 더 심각한 것으로 발전하기 전에 시스템을 정시에 유지 보수하도록 예약할 수 있을 것이다. 시스템 모니터링에서 고장 검출/진단 및 예진을 통하여 유지 보수를 최적으로 지원하는 과정은 Fig. 1과 같이 구성되어 있으며 이 중에서 예진은 Fig. 2와 같이 운전되고 있는 시스템이나 주요 부품의 남은 유효 수명(remaining useful life, RUL)을 예측하여 시스템의 신뢰성을 진단하는 기술이다²⁸⁻³¹⁾.

예진은 센서 정보를 이용하여 미래의 상태와 RUL을 추정하여 예상치 못한 사고, 시스템 정지시간 및 고장의 파급을 미연에 방지할 수 있으며, 운영 최적화를 위한 의사결정을 위하여 운전자에게 정보를 제공할 수 있다. 실시간 고장 검출과 예진 기술을 적용하면 내구성 증가와 더불어 가동률을 개선할 수 있으며 예상하지 못한 고장에 따른 계획되지 않은 수리 보수를 줄여 수명주기의 비용을 줄일 수 있는 장점이 있으며, 고장 검출과 진단 자료를 설계 및 제조 프로세스에 반영시켜 성능을 개선시키는데 기여할 수 있다³²⁻³⁶⁾. 연료전지에서의 예진의 목적은 운영비용을 줄이면서 수명을 향상시키기 위한 것으로, PEFC 시스템의 경우에도 신뢰성과 안전성 개선에 크게 기여할 수 있으며^{37,38)}, 운영비용을 절감하고 수명을 향상시킴으로써 PEFC 산업이 당면한 상용화 문제를 극복하는 데 도움이 될 것이다.

예진 방법을 개발하기 위해서는 PEFC의 열화구조에 대한 이해가 필요하다. 연료전지는 가스 터빈이나 피스톤 엔진과 같이 동력을 발생시키기 위하여 기계적으로 움직이는 부분은 없지만 기존 동력 시스템과 유사하게 시간에 따라 열화가 일어날 수 있다³⁶⁾. 연료전지의 핵심요소로서 전기를 발생시키는 막전극 집합체(membrane electrode assembly, MEA)에서는 기존의 기계적, 전기적 시스템과 달리 화학적 반응과 기계적 원인에 의하여 복합적인 열화 현상이 발생할 수 있다³⁹⁻⁴²⁾. 또한 부하 사이클, 운전조건 등에 의하여 성능 저하가 가속될 수 있다. 연료전지 성능과 수명의 핵심이 되는 MEA는 분리판 사이에 위치하여 직접 측정하거나 관찰하기가 쉽지 않아 고장 검출과 진단이 어렵다. MEA의 고장 현상과 영향에

대한 이해를 위하여 지속적인 연구가 수행되고 있는데, 이것은 연료전지 시스템의 보급 단계에서 고장 검출 및 예진을 위한 것보다는 열화 고장의 내재된 물리적 과정을 이해하고 열화에 대한 높은 내구성을 갖는 MEA를 개발하기 위한 것이다. PEFC의 고장 검출 및 예진 기술은 최근 몇 년 사이에 연구가 활성화되어 결과가 보고되고 있지만 다양한 반응을 포함하는 스택의 복잡성으로 인하여 실제 시스템을 위한 결과는 거의 없으며 현장을 위한 더 많은 연구 개발이 필요한 상태이다^{7,13)}. 예진에 대한 대표적인 세 가지 분류법으로는 1) 데이터 기반 접근법, 2) 모델 기반 접근법, 3) 두 가지 방법을 병행 사용하는 복합 접근법이 일반적으로 사용되고 있다^{37,43-46)}.

본 논문은 PEFC의 수명을 향상시키기 위한 예진 접근법을 분석하기 위한 것이다. 이를 위하여 우선적으로 문헌을 통하여 연료전지에서 나타나는 대표적인 열화 메커니즘을 분석하였으며 두 번째로 데이터 기반, 모델 기반 접근과 같은 예진 방법의 기술을 정리하였고 마지막으로 PEFC에 적용된 다양한 기술에 대해 분석도 수행하였다.

2. 열화 메커니즘

2.1 스택 핵심요소 구조

고분자 전해질 연료전지의 핵심요소인 막전극 집합체는 전해질막을 사이에 두고 양극과 음극 촉매층으로 구성되며 촉매층 바깥쪽에 기체 확산층이 위치하게 된다. 단위전지는 이와 같은 5개 층의 요소와 전기와 열의 전달체이면서 연료와 냉각수의 공급과 배출을 담당하는 분리판으로 구성된다. 단위전지는 운전 전압이 1 V 이하이므로 고전압을 얻기 위하여 단위전지를 직렬로 함께 적용한 스택으로 구성된다. 단위전지를 구성하는 각 요소의 성능 저하로 인하여 스택의 성능이 저하된다. 스택은 단위전지가 전기적으로는 직렬로 연결되어 있으나 유동 측면에서는 병렬로 연결된 구조이기 때문에 특정 단위전지 MEA의 요소의 고장은 주변의 단위전지 MEA에 연쇄적으로 영

Table 1. Components degradation in the stack⁴⁷⁾

Component	Failure modes	Causes
Membrane	Mechanical degradation	Mechanical stress due to non-uniform press pressure, inadequate humidification or penetration of the catalyst and seal material traces
	Thermal degradation	Thermal stress; thermal cycles
	Chemical/electrochemical degradation	Contamination; radical attack
Catalyst layer	Loss of activation	Sintering or dealloying of electrocatalyst
	Conductivity loss	Corrosion of electrocatalyst support
	Decrease in mass transport rate of reactants	Mechanical stress
	Loss of reformate tolerance	Contamination
	Decrease in water management ability	Change in hydrophobicity of materials due to Nafion or PTFE dissolution
GDL	Decrease in mass transport	Degradation of backing material
	Decrease in water management ability	Mechanical stress; change in the hydrophobicity of materials
	Conductivity loss	Corrosion
Bipolar plates	Conductivity loss	Corrosion; oxidation
	Fracture/deformation	Mechanical stress
Sealing gasket	Mechanical failure	Corrosion; mechanical stress

향을 미쳐 스택의 완전한 고장을 야기할 수 있다¹⁸⁾. 스택의 내구성 향상을 위해서는 연료전지 핵심요소인 MEA를 구성하는 전해질막과 촉매층의 열화 메커니즘을 이해할 필요가 있으며, 본 논문에서는 수명에 영향을 미치는 주요 요소에 대해 정리하였다. Table 1은 각 고분자 전해질 연료전지의 핵심요소에 대한 주요 열화모드를 정리한 것이다⁴⁷⁾.

2.2 전해질 막 열화

연료전지에서 전해질 막은 구조와 기능 측면에서 가장 중요한 요소 중 하나이다. 고분자 전해질 연료전지를 위해서 다양한 전해질 막이 연구 개발되고 있지만 가장 널리 사용되는 것은 불소계 perfluorosulfonic acid (PFSA) 막으로 Nafion으로 대표되고 있다. 전해질 막 열화는 화학적 열화와 열적 열화를 포함하는 기계적 열화로 분류될 수 있다^{48,49)}. Fig. 3과 같이 전해질 막의 열화를 가속화시키는 대표적인 운전요인으로는 제조상의 결함과 외부 오염원과 더불어 습

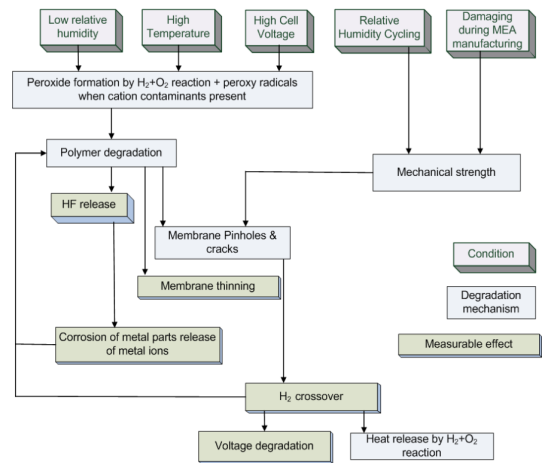


Fig. 3. Degradation condition, mechanism and effects, for membranes⁴⁹⁾

도, 온도조건과 높은 전위 상태 등 운전조건 등이 있으며 이들 조건들이 복합적으로 작용하여 가스 크로스오버와 과산화수소와 수산기를 생성하여 전해질 막을 손상시키게 된다⁵⁰⁾.

PFSA 전해질 막의 화학적 분해는 막의 내구성에

결정적으로 영향을 미치는 것으로, OH (hydroxyl)와 OOH (peroxy) 등의 라디칼에 의한 것으로 중합체의 유도분해를 포함한다. 화학적 분해 과정은 아직 완전히 이해되지는 않았지만, 전해질 막에 야기되는 손상과 그에 따른 물성변화는 분명하다. 전도손실의 감소에 따른 이온 교환 용량의 감소 그리고 불화물 방출에 따른 전해질 두께 변화가 나타난다. 현재 일반적으로 받아들여지는 PFSA 중합체의 화학적 분해 메커니즘은 radical의 공격에 의한 중합체 주쇄의 “풀림(unzipping)” 반응과 측쇄의 사슬 단절(scissions)을 유발하여 막의 얇아짐을 초래하는 것이다. 반응성 산소 종(ROS)은 전기 촉매 표면 위의 크로스오버 가스의 화학적 또는 전기 화학적 반응을 통하여 직접 생성될 수 있으며 또 다른 경로는 과산화수소(H_2O_2)의 동질 분해(homolysis)를 통하여 발생한다. 셀 또는 스택 물질 또는 가슴기의 부식으로 인하여 생성된 철 또는 니켈 같은 양이온은 자유 라디칼의 주요 공급원인 과산화수소를 생산하는 촉매 역할을 수행하며, 철을 포함한 Cu^{2+} 또는 Ti^{3+} 와 같은 다가 금속 이온이 H_2O_2 를 분해하여 수산화 라디칼을 생성하는 촉매 역할을 한다. 또한, 형성된 음이온은 중합체의 술폰산 부위와 결합하는 경향이 있는데, 이는 막의 부분 건조를 유발하고 전도성 손실을 초래한다. 고분자 구조를 공격하는 이러한 모든 손상 효과는 동시에 발생하므로 전체 연료 전지 분해의 매우 복잡한 메커니즘을 생성한다¹⁷⁾.

기계적 열화와 손상은 전해질 압력 및 기계적 응력 그리고 제조 결함에 의하여 나타날 수 있다. 기계적 손상으로는 우선적으로 전해질의 원천적인 결함이나 막전극접합체 제조 공정 중에 발생하는 구멍(pinhole), 균열, 찢김 등이 있으며 이는 수명 초기에 회복 불능의 고장을 유발한다. 또한 스택 제조 과정에서 유동채널(channel)과 리브(rib) 그리고 가스켓을 포함하는 분리판과 전해질 막의 불균일한 접촉에 의한 응력에 의하여 변형이나 손상이 발생할 수 있으며, 장기간 운전된 연료전지의 경우 전해질 막의 시간 의존 변형에 해당하는 크리프 및 미세 균열 등이 나타난다¹⁷⁾. 이런 현상은 분리판 사이의 멤브레인

에 반복적으로 가해지는 응력과 상대 습도의 국소 변화에 의한 변형과 관련이 있다. 멤브레인의 미시적이고 거시적인 결함을 유발하는 중요한 요소는 개방 회로 전압(OCV), 온도 사이클, 전압 사이클 및, 상대 습도 사이클 등이다. 시동, 정지와 부하 변화 등에 의하여 열, 압력 및 습도 변화를 겪게 되며 전해질 막의 반복적인 팽창과 수축 등에 의하여 전해질 막 강도의 점진적인 감소를 초래하며, 치수 변화와 전극 사이의 불량한 계면 접촉 및 핀홀 형성과 같은 결함을 초래할 수 있다. 또한 외부적으로 과도하거나 균일하지 않은 체결력은 기계적으로 불균일한 응력과 변형을 유발하며, 이러한 응력과 변형은 연료전지의 성능 저하 및 연료전지 스택을 완전한 고장에 이르게 하는 전해질 막의 손상을 초래할 수 있다^{17,50-52)}. 멤브레인에 가해지는 국부 응력으로 인한 핀홀 형성은 고분자 전해질 연료전지 전해질 파손의 주된 이유 중 하나이다. 핀홀 등에 의한 멤브레인의 물리적 손상은 반응 가스의 크로스오버를 발생시키며, 산화제 및 환원제가 촉매 표면에서 연소되어 국부적인 핫 포인트를 생성시킬 수 있다. 이것이 다시 핀홀과 가스 크로스오버를 가속화시키는 악순환을 초래하여 전해질 및 전지 전체를 손상시키게 된다.

2.3 촉매층 열화

고분자 전해질 연료전지에서는 일반적으로 나노 크기의 입자를 가진 백금(Pt) 또는 백금 합금이 화학 반응 속도를 증가시키기 위하여 전극으로 사용되며 지지체로서 탄소가 사용된다. 촉매층 활성표면적의 손실은 백금의 산화와 용해 및 탄소 지지체의 부식 그리고 전해질과 동일한 이오노머의 열화에 의한 것이다. Fig. 4와 같이 전극 촉매층의 열화를 가속화시키는 대표적인 요인은 외부 요인에 의한 피독과 기계적인 결함 그리고 동결/해동 과정을 제외하고는 대부분 운전조건으로 나타날 수 있는 것으로 OCV와 연료 및 산화제 부족, 물관리 미흡 등이 있으며 이런 요인에 의하여 촉매 산화나 용해 그리고 지지체의 산화 등이 발생하여 전극의 활성 표면적 등을

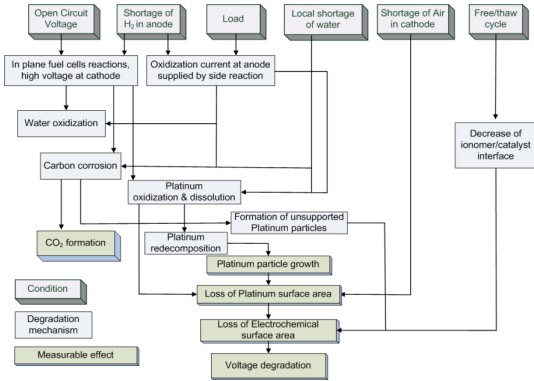


Fig. 4. Degradation condition, mechanism and effects, for electrodes⁴⁸⁾

감소시켜 성능을 저하시키게 된다^{50,53)}.

빈번하게 변경되는 부하는 전극에서 가스 농도에 영향을 미치는 가스 자체의 공급은 물론 물관리 문제를 초래할 수 있다. 부하가 급격하게 변화하면 연료 및 산소의 부족을 초래할 수 있으며, Pei와 Chen⁵⁴⁾은 PEFC 버스의 실제 주행 사이클을 분석하여 전체 PEFC 열화의 56.6%가 동적 부하 변화에서 기인한 것을 확인하였다. 33%의 열화는 시동시 사이클에서 발생하였고, 5.8%는 고출력 부하에서, 4.7%는 공회 전시 발생하였다⁵⁴⁾. 이런 조건이 탄소 부식 또는 백금 용해와 같은 비가역적 열화를 유발할 수 있다^{54,55)}. 부하가 변경된 후 전압이 새로운 정상상태에 도달할 때까지 시간 지연이 발생하며, 이것은 가스 공급의 지연, 전극에서의 불균일한 농도 분포, 전해질에서 수분 함량 회복의 지연 등의 원인이 된다. 수분과다 문제 또는 연료/산화제 부족은 백금 용해 및 응집과 같은 열화 효과를 가속화시킨다. 장시간 운전할 경우 탄소 부식은 물론 전극에서 Pt 입자 크기가 성장하는 것을 확인할 수 있는데, 전극의 열화는 작동 온도와 가습량이 높고 높은 전위로 사이클링하는 동안 가속된다^{56,57)}. Pt 용해는 전기화학적 표면적(electro-chemical surface area, ECSA)을 감소시키고 그에 따라 PEFC의 수명을 감소시킨다. 전극/멤브레인 계면 부근에서 금속성 Pt 밴드의 침착은 Pt 용해의 결과이다^{50,58)}. 백금 응집 및 용해 외에, 탄소 부식은 또한 ECSA를 감소시킨다. 탄소 부식의 주된 추진력

은 양극과 음극에서의 전위인데, 특히 부하 변화, 연료 및 산화제 부족 현상이 전위 변화의 주요 원인이 된다. 탄소 화학적 부식은 기본적으로 0.3 V보다 높은 전위에서 백금의 활성화에 의하여 가능하다. 가장 높은 CO₂ 부식률은 보다 높은 음극 전위 범위인 0.8 V 이상에서 발생한다⁵⁹⁾.

산화제 결핍의 경우 셀 전압을 0 V보다 약간 낮은 값(약 -0.1 V)으로 떨어트린다. 과산화수소에 의한 탄소의 화학적 산화는 양극에서 0 V에 가까운 전위에서 촉진된다. 연료 부족은 전위의 반전을 유발하여 전극에 영구적 손상을 유발시킬 수 있다⁶⁰⁾. 연료 부족에 의하여 유발되는 탄소 부식은 촉매 탄소 지지체의 산화와 백금 응집에 의한 ECSA의 손실을 통하여 연료전지의 성능과 수명을 단축시키게 된다⁶¹⁾.

2.4 GDL 열화

기체 확산층은 분리판과 촉매층 사이에서 반응기체 및 물의 공급과 배출을 균일하게 해주고 전기와 열전도를 위한 접촉면 역할을 한다. 최근에는 다공성 금속도 사용되고 있지만 일반적으로 탄소 종이나 천으로 만들어진다. GDL 열화는 주로 탄소의 산화 및 소수성을 위한 PTFE 성분의 분해로 인한 매크로 및 미세 다공성층의 소수성 손실과 관련되어 있다. 이러한 구조 변화는 기체 투과에 영향을 줌으로써 셀 성능을 저하시킨다. 또한 GDL 열화는 PTFE와 탄소재료에 동시에 영향을 주는 OH 형성과 역전압 전위에 의한 탄소 부식을 통하여 일어나며 수분과다, 연료 부족 등과 연관이 있다⁴⁰⁾. GDL의 탄소 부식은 촉매 특성을 악화시켜 셀 성능에 부정적인 영향을 미칠 수 있으며⁶²⁾, PTFE 손실은 GDL의 물리적 변형을 통하여 전자 전도성 및 소수성의 저하로 인한 셀 성능 감소를 초래한다^{63,64)}.

3. 예지 진단 기술 분석

예진 기술은 상태기반 유지 보수(condition-based maintenance)를 지원하기 위한 것으로 실시간으로

현재 상태를 모니터링하여 조치를 취하는 실시간 고장 검출/진단 기술과 더불어 현재 상태를 기반으로 앞으로의 성능 저하 추이를 예측하여 유지 보수의 최적화 전략을 제공하는 기술이다³⁷⁾. 시스템의 상태 기반 유지 관리 시스템은 자료 측정에서 유지 보수를 위한 의사결정까지 Fig. 1과 같은 과정으로 구성된다¹³⁾. 예진은 고장 검출 및 진단 결과를 바탕으로 시스템 및 부품 고장의 전조 증상인 열화 현상을 예측하고 수명을 추정하여 수리나 제어변경 등의 의사결정을 지원하는 기술이다.

Fig. 5는 예진의 세 가지 방식인 1) 데이터 기반, 2) 모델 기반, 3) 이들 방법을 동시에 연계하여 사용하는 복합 방식의 접근법과 장단점을 보여주고 있다^{29,37,43-46,65)}. 데이터 기반 접근 방식은 통계 기법 및 인공지능을 이용한 기계 학습(machine learning) 기술로 더 분류할 수 있다. 통계 기법은 모수(parametric)에 의한 방식과 비모수(nonparametric) 방식으로 분류되며, 기계 학습 기술은 테스트 데이터를 사용할 수 있는 감독 학습(supervised) 또는 테스트 데이터를 사용할 수 없는 비감독(unsupervised) 학습으로 구분된다. 모델 기반 접근 방식은 고장 모델(PoF) 및 시스템 모델 접근 방식으로 분류할 수 있다.

3.1 데이터 기반 접근 방식

데이터 기반 접근법은 시스템 모델이나 시스템 특정 지식을 사용하지 않으므로 블랙박스 접근 방법으로 간주할 수 있다. 관측된 이력 자료로 시스템의 거동을 학습시켜 예진을 수행하는 데 사용한다. 따라서 데이터 기반 접근 방식은 시스템이 복잡하여 모델식의 유도가 어려운 경우에 적합하다. 사전에 관측된 자료를 이용하여 미래의 특성을 예측하게 되므로 일반적으로 시스템 성능의 통계적 특성이 고장이 발생할 때까지 변경되지 않는다는 전제하에 적용된다. 데이터 기반 접근 방식의 주된 장점은 실행 속도가 빠르고 계산이 효율적이라는 것이며 단점은 성능 데이터, 허용 범위에 대한 이력 자료 및 지식이 확보되어야 한다는 것이다. 즉, 예측의 신뢰 수준이 사용

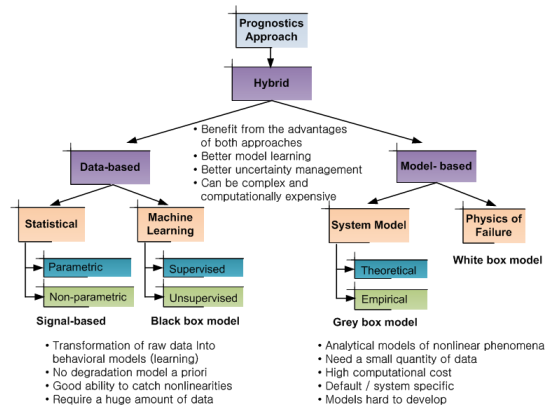


Fig. 5. Prognostics approach⁶⁵⁾

가능한 과거 실험 자료에 달려 있다는 것이다. 새로운 시스템의 경우 시스템 구축과 데이터 수집에 고비용과 장시간이 소요될 수 있다. 이런 문제를 해결하기 위해 다음과 같이 세 가지 실험 전략이 이용될 수 있다²⁹⁾.

- Hardware-in-the-loop simulation (HILS): HILS는 시뮬레이션된 부하에서 하드웨어를 테스트하는데 사용되는 것으로 사전 진단을 위한 자료 확보, 진단 알고리즘 개발, 테스트 및 검증을 위하여 사용될 수 있다.

- 가속 수명 테스트(ALT): 가속 부하 시험은 가혹한 실험조건을 적용하여 제품이 정상조건보다 더 빨리 성능 저하나 고장이 나도록 설계된 것이다. 연료 전지에 일반적으로 많이 적용되는 방식으로 여러 가지 환경조건과 부하조건을 독립적으로 적용하여 고장을 가속화할 수 있다.

- 실시간 학습: 실시간 학습은 시스템의 운전 자료를 그대로 사용하는 것으로 새로운 시스템이 일정 기간 동안 고장이 없다는 가정 하에 정상상태의 자료를 확보하는 방식이다.

Fig. 5와 같이 데이터 기반 접근법은 1) 통계적 접근과 2) 기계 학습 접근법으로 구분할 수 있다. 통계적 접근은 미리 분석된 자료의 기본적인 통계 특성을 기반으로 한다. 새로운 관측값이 주어진 자료의 통계적 특성에서 벗어나면 이상으로 간주한다. 통계적 방법으로는 1) 모수 접근법과 2) 비모수 접근

법이 있다. 모수 접근법은 예상 데이터의 기본 통계 특성을 기반으로 한다. 즉 가정된 기본 확률 분포에 기초하여 그 확률 분포와 관련된 모수가 자료로 계산된다. 정상적인 운전 자료를 이용하여 모수가 계산되고 확률 분포가 주어진다. 이 분포를 사용하여 비정상상태를 검출하고 RUL을 예측하게 된다. 비모수적 접근법은 기본적인 확률 분포가 알려지지 않은 경우와 표준 분포 등으로 데이터를 특성화할 수 없는 경우에 적합하다. 주어진 자료와 새로운 자료를 비교하기 위하여 히스토그램 비교와 거리 산정을 통한 방식인 최근접 이웃(nearest neighbor, NN), K-평균, 서포트 벡터 머신(support vector machine, SVM) 분류 방법 등이 사용될 수 있다²⁹⁾.

기계 학습법은 수집된 정상, 비정상 자료를 정보로 이용하여 신경망 등을 학습시켜 미래를 예측하는 방식이다. 기계 학습 분야에서 잘 알려진 방법 중 하나는 인공지능 신경망 방식이다. 기계 학습법은 분류법에 따라서는 블랙박스 모델식으로도 분류될 수 있다. 기계 학습법은 1) 감독 학습, 2) 비감독 학습 그리고 3) 강화 학습의 세 가지 유형으로 구분할 수 있다. 기계 학습 접근법을 사용하여 데이터를 정상과 비정상 등 여러 그룹으로 분류하거나 클러스터링할 수 있다. 또한 이 정보는 시스템의 유효 수명을 예측하는 예측 알고리즘에 제공될 수 있다. 입력 자료에 레이블이 지정된 출력이 주어진 학습을 감독 학습이라고 하며, 예진과 건전성 관리 문제의 대부분은 정상적인 자료와 고장 자료를 사용할 수 있는 감독 학습 문제로 취급될 수 있으며 신경망이나 SVM 방식이 사용될 수 있다. 감독되지 않은 학습은 미리 분류된 데이터가 없는 경우에 사용된다. 이 방법 역시 클러스터링 기술을 기반으로 데이터를 여러 그룹으로 분류하고 정상적인 데이터를 식별할 수 있다. 감독되지 않은 학습법으로는 주성분 분석법(PCA)과 K-평균 클러스터링, 퍼지 클러스터링 방식이 사용될 수 있으며, 랜덤신호의 예측을 위하여 칼만 필터(Kalman filter, KF)와 입자 필터(particle filter, PF) 방식이 사용될 수 있다²⁹⁾.

3.2 모델 기반 접근 방식

모델 기반 접근법은 고장을 나타내는 물리적 현상을 예측하는데 수학적 방정식을 사용하기 때문에 때로는 고장의 물리학적(physics-of-failure, PoF) 접근법이라고도 한다^{29,46,66)}. 해당 시스템의 고장 메커니즘, 시스템의 구조, 구성 재료 및 외부 부하 등에 대한 지식이 필요하다. PoF 기반 모델은 고장모드, 메커니즘 및 효과적인 분석을 기반으로 제품 설계를 최적화하는 데 사용될 수 있다. 시스템 모델을 위해서는 Fig. 5와 같이 순수하게 이론적으로 접근하는 화이트 박스 모델과 IV 곡선과 같이 주어진 형태의 실험식의 계수를 실험값 기반으로 결정하는 그레이 박스 모델식이 사용될 수 있다. 모델식이 결정되면 실제 측정값의 모델식 출력의 차이를 사용하여 이상 상태 및 고장을 조기에 검출할 수 있으며, 이와 동시에 해당되는 모델식을 이용하여 성능 저하의 추이를 예측하여 잔여 수명을 추정할 수 있다^{67,68)}.

3.3 지식 기반 및 복합 접근법

실제 현장에서 고장 검출과 유지 보수에 대한 적정성을 판단하기 위하여 전문가의 경험과 지식을 규칙화된 정보로 축적하여 활용하는 방식이다. 지식 기반 기법은 전문가가 경험적으로 수행하던 방법과 동일하게, 현재의 상황과 이전에 지식으로 확보된 고장 사건의 데이터뱅크 사이의 유사성을 평가하고 전문가 및 퍼지 시스템을 사용하여 기대 수명을 추론하는 것이다^{46,69)}. 지식은 다양한 성능 저하 현상과 고장에 따른 유지 보수 데이터가 실제 측정된 것이다. 고장 검출과 잔여 수명을 예측하기 위하여 쉽게 표현이 가능한 IF-THEN 규칙과 퍼지 추론 시스템을 사용한 전문가 시스템이 적용될 수 있다^{69,70)}. 연료전지 분야에서는 이러한 기법이 직접적으로 적용된 사례가 거의 없다.

복합 방식은 예측의 정확도를 높이기 위하여 데이터 기반 및 모델 기반 방식을 결합하여 이 둘의 장점을 활용하는 것으로 수학적 모델과 더불어 충분한 운전 데이터 및 지식을 필요로 한다. 복합 접근법의

목적은 잔여 유효 수명을 추정하기 위한 모델 기반 및 데이터 기반 접근법 각각의 한계와 단점을 극복하는 것이다⁴⁶⁾. 실시간 분석이 필요할 경우 계산시간으로 인하여 적합하지 않지만 예진이 off-line에서 이루어질 경우 문제가 되지 않으며, 복합 접근법의 정확도는 개별적인 모델 기반이나 데이터 기반 접근법보다 높기 때문에 다양한 분야에서 복합 접근법이 적용되고 있다^{29,37,46)}.

4. PEMFC에 대한 예지 진단 기술

4.1 예지 진단 및 RUL 추정

연료전지에서 실시간 고장 진단과 예진을 통한 잔

여 수명을 예측하는 것은 유지 보수 일정을 계획하며 스택의 지속 가능성을 개선시켜 유지비용을 저감시키고 수명을 향상시킬 수 있는 중요한 기술이다. 최근에 PEMFC에 대한 예진과 수명예측에 대한 종합적 분석은 Sutharssan 등³⁷⁾, Zatoń 등¹²⁾, Jouin 등⁷¹⁾에 의하여 이루어졌으며, 연료전지의 실시간 고장 진단은 스택의 전압은 물론 공정 변수인 유량, 온도, 압력 등 다양한 변수를 통하여 이뤄지고 있으나⁷²⁾, 예지 진단을 위한 성능 저하의 지표로서는 주로 셀 전압 신호만이 사용된다. 대부분의 연료전지 시스템에서 셀전압 강하가 유발되며 전압 측정을 위하여 비싸고 전문화된 측정기를 필요로 하진 않기 때문에 셀전압은 연료전지를 감시하는 가장 정확하고 빠른 신호 중 하나이다³⁷⁾.

Table 2. Model-based approach

Method	Description	Output	Articles
Physical-based Model	Proposing an unscented Kalman filter (UKF) approach for the purpose of damage tracking and remaining useful life (RUL) prediction of a PEMFC Developing a physics-based catalyst degradation model characterizing the degradation rate of the electro-chemical surface area (ECSA)	Cell Voltage	Zhang and Pisu ⁷³⁾ (2012), Zhang and Pisu ¹¹⁾ (2014)
Semi-empirical Model (IV curve)	Building a degradation model capable of tracking the aging of the power delivered by the stack using the polarization equation with parameters that are functions of time	Stack power	Jouin et al ⁷⁴⁾ (2015), Jouin et al ⁷⁵⁾ (2016)
Semi-empirical model (IV curve, equivalent circuit)	Composing a static part and a dynamic parts The static part is based on the Polarization equation, and dynamic part is electrical equivalent circuit of physical phenomena. The parameters of the model are successively updated based on characterization measurements such as polarization curves and EIS (electrochemical impedance spectroscopy).	Cell Voltage	Lechartier et al ⁷⁶⁾ (2015)
Semi-empirical model (IV curve)	Using particle filter to estimate time-varying parameters of the polarization equation	Stack power	Jouin et al ⁷⁷⁾ (2015)
Semi-empirical model (IV curve, an extended Kalman filter)	Using extended Kalman filter to estimate time-varying parameters of the polarization equation	Stack Voltage	Bressel et al ⁷⁸⁾ (2016)
Semi-empirical model	Using extended Kalman filter to estimate the effective membrane surface area (EMSA) of each cell using cell voltage measurement	Effective Membrane Surface Area(EMSA)	Headley et al ⁷⁹⁾ (2017)
Semi-empirical model (IV curve)	Proposing an Adapted unscented Kalman filter (AUKF) approach to estimate SoH and RUL The total resistance (R) and the exchange current of the polarization equation are used as the aging indexes	Stack Voltage	Liu et al ⁸⁰⁾ (2017)

Table 3. Data-driven and hybrid approach

Method/Estimation	Description	Output	Articles
Particle filtering	Using a particle filtering framework which allows predicting the future behavior and estimating the remaining useful life Three different model equations (Linear, exponential and logarithmic models) are tested as state models	Cell Voltage RUL	Jouin et al ⁽⁸¹⁾ (2014)
Adaptive neuro-fuzzy inference system (ANFIS)	Introducing an Adaptive Neuro-Fuzzy Inference System (ANFIS) based methodology for prediction of time-series The methodology is evaluated by predicting the voltage in a stack under constant operation during a long term operation test	Stack Voltage RUL	Silva et al ⁽⁴⁵⁾ (2014)
Echo state network (ESN) with ANOVA	Analyzing variance applied to echo state network (ESN) which forecasts the aging of a fuel cell system The application of the Analysis Of Variance (ANOVA) has prioritized parameters of ESN.	Cell Voltage RUL	Morando et al ⁽⁸⁴⁾ (2014), Morando et al ⁽⁸²⁾ (2017)
Summation Wavelet-Extreme Learning Machine model	Proposing a constraint based ensemble of Summation Wavelet-Extreme Learning Machine (SW-ELM) This ensemble strategy is generalized on two rapid learning connectionist networks namely, extreme learning machine (eLM) and Leaky-Echo State Network (Leaky-ESN)	Stack Voltage RUL	Javed et al ⁽⁸³⁾ (2016), Javed et al ⁽⁴⁴⁾ (2015)
Particle filtering with logarithmic, exponential and linear models (Hybrid)	Improving the work presented in Headley et al ⁽⁷⁹⁾ by including characterization-induced disturbances and voltage recoveries that can be observed during the stack aging Three PFs are applied for the State model of power degradation, degradation's acceleration, and power recoveries	Cell Voltage RUL	Jouin et al ⁽⁸⁵⁾ (2014)
Particle filter in bond graph model (Hybrid)	Developing BG model named Bond Graph in Linear Fractional Transformation (BG-LFT) Using PF algorithms, SOH estimation is obtained along with the estimation of the associated unknown parameter that influences the degradation evolution	Cell Voltage RUL R, IL	Mayank et al ⁽⁸⁷⁾ (2016)
Particle filter with polynomial equation, equivalent circuit for power recovery (Hybrid)	Presenting some improvements of PF based prognosis to predict the RUL of stacks regarding the power degradation recovery phenomena Different models such as quality evolution, equivalent circuit, and polynomial equation are studied to adapt the phenomena during operation	Stack Power	Zhang et al ⁽⁸⁶⁾ (2016)
Particle filter with exponential equation, non-linear auto-regression neural network	Proposing a model-based voltage degradation prediction model using empirical equation and particle filter approach, and a data-driven prediction model using NARNN The overall prediction results are described using weighted average	Stack Voltage	Zhou et al ⁽⁸⁸⁾ (2017)

Table 2와 Table 3은 예진을 위하여 잔여 수명을 예측하는 다양한 방법을 정리한 것이며 각각 대표적인 모델기반 방식과 자료기반방식 및 복합방식을 나타내고 있다.

4.2 모델 기반 예지 진단

Table 2에 나타나듯 연료전지는 순수하게 물리모

델식을 통하여 시간에 따른 성능 변화를 예측하는 것이 쉽지 않기 때문에 반 경험(semi-empirical) 특성 식인 IV 곡선 등의 계수를 시간의 함수로 변경한 열화 모델식이 수명 추정을 위하여 주로 사용되고 있다. 이들 함수의 계수는 실험 자료를 이용하여 결정할 수 있다. 물리적 모델식 연구로는 연료전지의 잔여 유효 수명을 예측하기 위하여, 운전조건과 ECSA 그리고 열화 속도 사이의 관계를 설정하는 물리학

기반의 촉매 열화 모델 연구가 있다^{11,73}). ECSA를 예측하기 위하여 간이화된 1차 동적 모델식을 사용하였으며 로우 패스 필터와 무향 칼만 필터(unscented Kalman filter, UKF)가 느린 열화 현상을 포착하기 위하여 사용되었다. 대부분의 반 경험식 이용 방식은 활성손실, 저항손실 그리고 농도손실로 구성된 분극곡선, 즉 IV-특성식을 기반으로 하고 있다. 각 손실을 나타낸 함수의 계수나 변수 중에서 열화에 관계된 것을 시간의 함수로 나타낸 후에 이것을 시험 자료를 이용하여 구하게 된다. 계수를 구하는 방식으로는 최소자승법⁷⁴⁻⁷⁶, 입자 필터⁷⁷, 칼만 필터 방식⁷⁸⁻⁸⁰ 등이 대표적으로 사용되고 있다. IV-특성식에서 수소측의 농도 손실을 무시하면 다음과 같이 표시할 수 있다^{74,75}).

$$E = E_{rev} - \frac{RT}{2\alpha_a F} \ln\left(\frac{i_{loss} - i}{i_{0,a}}\right) - \frac{RT}{4\alpha_c F} \ln\left(\frac{i_{loss} - i}{i_{0,c}}\right) - i(R_{ion} + R_{ele} + R_{cr}) + B_c \ln\left(1 - \frac{i}{i_{max,c}}\right) \quad (1)$$

여기서 R 은 가스 상수이며, T 는 스택 온도, α_a , α_c 는 음극과 양극의 charge transfer coefficient, F 는 패러데이 상수, i_{loss} 는 내부 전류 손실, $i_{0,a}$, $i_{0,c}$ 는 음극과 양극의 교환전류 밀도, R_{ion} , R_{elec} , R_{cr} 은 각각 이온, 전기 그리고 접촉 저항이며, B_c 는 전극에서 불균일한 전류밀도를 야기하는 물과 가스의 축적을 고려한 실험계수, $i_{max,c}$ 는 양극에서의 한계전류밀도이다. 이들 계수와 변수를 일정한 상수(R , F) 공정에 의하여 제어되는 변수(T , P , E_{rev} , $i_{0,a}$, $i_{0,c}$) 그리고 나머지 열화 변수로 구분하였으며⁷⁴), 열화변수를 다음과 같이 시간의 함수로 모델링하였다.

$$i_{loss}(t) = i_{loss,0} \exp(b_{loss} t) \quad (2)$$

$$R(t) = R_{ion} + R_{ele} = R_0 + b_r t \quad (3)$$

$$R_{ion}(t) = R_{ion,0} \exp(b_{ion} t) \quad (4)$$

$$B_c(t) = B_{c,0} + b_{Bc} t \quad (5)$$

$$i_{max,c} = \frac{D_{O_2}(t)}{L_{GDL}} = \frac{4F}{RT} \left(\frac{D_{O_2} + b_{D^*} t}{L_{GDL}} \right) \quad (6)$$

$$i(t) = \frac{I(t)}{A(t)} = \frac{I(t)}{A_0 \exp(b_{A1} t) + A_1 \exp(b_{A2} t)} \quad (7)$$

여기서 D_{O_2} 는 산소 확산 계수이며, A 는 시간에 따라 감소하는 전극의 표면적을 나타낸다. 식 (2), 식 (7)을 식 (1)에 대입하면 시간의 함수로 열화를 나타내는 모델식이 유도되며 실험 자료를 이용하여 식 (2), 식 (6)에서 사용한 계수를 최소자승법으로 구하여 열화를 예측하게 된다^{74,75}).

열화 경향을 예측하기 위하여 IV-특성식으로 정적인 특성만을 파악하고 등가회로를 이용하여 동적인 열화특성을 파악하는 방법이 제안되었는데⁷⁶), 등가회로모델(equivalent circuit model, ECM)은 시간의 함수인 상태방정식으로 표현하였다. 실험 자료를 이용하여 주어진 IV-특성식과 등가회로식의 임피던스 특성 계수를 구하기 위하여 회귀(regression) 방식이 사용되었다. 정적인 전압과 동적인 전압은 선형적으로 합해져서 전체적인 전압 상태를 예측하는데 사용되었다.

식 (1)에서 식 (7)로 주어진 IV-특성식을 기반으로 한 열화 모델식^{73,74})의 계수를 예측하고 열화를 추정하기 위하여 입자 필터가 적용되었다. 칼만 필터와 마찬가지로 불확실성이 있는 자료를 이용하여 계수를 예측하고 예전에 적용하는데 유리하다. 입자 필터 방식은 선형식이나 로그함수 등 사전 정보 없이 임의의 기본 방정식을 예측식으로 사용하는 자료 기반 접근법과 모델 기반 접근법과 동시에 사용하는 복합 방식으로 다양하게 채용되고 있다^{67,77,81}).

부하 전류에 기초한 RUL을 추정하기 위하여 확장 칼만 필터(extended Kalman filter, EKF)가 사용되었다^{78,79}). 식 (8)의 IV-특성식에서 저항과 한계전류를 열화를 나타내는 지수로 선택하여 시간의 함수로 표시하였으며 이들 함수의 계수를 실험 데이터를 이용하여 구하였다⁷⁸).

$$E = E_{rev} - A T \ln\left(\frac{i}{i_0}\right) - B \ln\left(1 - \frac{i}{i_L}\right) - iR \quad (8)$$

$$R(t) = R_0(1 + \alpha(t)) \quad (9)$$

$$i_L(t) = i_{L0}(1 + \alpha(t)) \quad (10)$$

$$\alpha(t) = \beta t \quad (11)$$

열화 지표로서 성능 저하의 핵심요소인 effective membrane surface area (EMSA)가 사용되었다. IV-특성식의 전류 밀도를 EMSA의 함수로 표시하여, 칼만 필터로 예측하는 상태방정식과 측정값의 관계를 EMSA 함수로 표시하였다. EMSA로 스택의 상태와 RUL을 추정하기 위하여 적응형 확장 칼만 필터 (adapted extended Kalman filter, AEKF)가 사용되었다⁷⁹⁾.

또한 확장 칼만 필터 방식⁷⁸⁾의 초기 계수 설정 방식을 개선하여 정확성을 높이기 위하여 적응형 확장 칼만 필터가 사용되었다⁸⁰⁾, 열화 모델식으로는 식 (8)에서 식 (11)이 동일하게 사용되었으며 EKF에서 일정하다고 가정한 측정과 공정노이즈의 covariance를 전압 신호의 잔차를 이용하여 계속 수정하여 초기 계산의 수렴성과 계산의 정확도를 높였다.

4.3 자료 기반 및 복합 방식 예지 진단

자료 기반 접근방법은 Fig. 1과 같이 순수하게 기존 자료의 통계적 값이나 기존 자료와의 비교를 통해 예진을 하는 통계적 방법과 신경망이나 SVM 등을 이용하여 학습시키는 방법이 사용될 수 있다. 또한 랜덤 자료의 학습과 예측을 위하여 상태방정식이 필요한 칼만 필터나 입자 필터가 사용되고 있다. 본 논문에서는 반 경험식으로 IV-특성식이나 등가회로식과 같이 연료전지의 특성에 기반한 방정식(그레이박스 모델)을 사용할 경우 모델 기반 방식으로 분류하였으며 그렇지 않은 경우 자료 기반 방식으로 구분하였다. 논문에 따라 모델 기반 방식으로 분류하는 경우도 있지만 연료전지 특성에 대한 사전정보

없이 일반적인 회귀식인 선형식이나 로그함수 또는 지수함수로 표시하여 계수를 예측한 경우 신경망 방식과 같이 블랙박스 모델로 간주하여 자료 기반 방식으로 분류하였다. 비가역 전압 강하를 예측하여 잔여 수명을 추정하기 위한 지표로서 입자 필터 방식의 프레임워크가 제안되었다⁸¹⁾. 전압 강하의 학습과 예측을 위한 상태 모델로는 1) 선형 모델, 2) 지수 모델 및 3) 로그 모델 등 세 가지 상태 모델이 사용되었다.

$$x_{k+1} = -\beta(t_{k+1} - t_k) + x_k \quad (12)$$

$$x_{k+1} = \exp(-\beta(t_{k+1} - t_k))x_k \quad (13)$$

$$x_{k+1} = -\alpha \ln(t_{k+1}/t_k) - \beta(t_{k+1} - t_k) + x_k \quad (14)$$

선형 모델은 일반적으로 사용되는 방식이나 수명 초기나 말기 부분을 예측하기에는 어려운 것으로 알려져 있으며⁸¹⁾, 지수함수나 로그함수와 연계하여 성능예측의 정확성을 높일 수 있다. 반대로 로그함수의 경우 전체 시간을 통하여 성능이 저하되는 것을 예측하기 어렵기 때문에 선형 부분을 추가하여 사용하였다⁸¹⁾. 이 경우 일정한 부하 상태에서 IV-특성식과 유사한 형태가 될 수 있다. 두 가지 연료전지 스택에 대하여 100-1,000시간 정도의 실험을 통하여 3가지 모델을 비교하였으며 초기에는 로그함수의 예측 오차가 가장 크게 나타났으나 200시간 이후에 가장 정확하고 안정적으로 잔여 수명을 예측하였다. 시계열 방정식의 적응형 신경망 퍼지 추론시스템 (ANFIS)을 이용한 추정방식이 PEMFC 스택의 정상 작동 중 열화로 인한 전압 강하를 예측하기 위하여 적용되었다⁴⁵⁾. 미래의 전압을 추정하기 위하여 현재 값을 포함하여 4개의 전 단계 값을 ANFIS 입력 값으로 사용하였다. 여기서 F는 ANFIS로 β 시간 후의 상태를 예측하기 위하여 4단계 α 시간에서의 상태 값을 ANFIS의 입력 값으로 사용하는 것이다.

$$\hat{u}(t+\beta) - u(t) = F(u(t) - (u(t-4\alpha), \dots, u(t) - u(t-\alpha))) \quad (15)$$

동적 뉴런 저장소를 사용하는 Echo State Network (ESN) 기반의 데이터 기반 접근법이 PEMFC의 잔여 유효 수명을 예측하기 위하여 연구되었다^{82,83}. ESN은 순환 신경망(recurrent neural network, RNN)이므로 과거의 자료를 이용하여 미래를 예측하는데 효과적으로 사용할 수 있다. 평균 셀 전압이 PEMFC의 열화를 예측하는 지표로 사용되었다. 예측을 최적화하기 위하여 ESN에 사용되는 변수들에 대한 민감도를 분산 분석(ANOVA) 통계 기법을 사용하여 계산하였다. 연료전지 전압의 열화 예측에 영향이 큰 ECN 변수, 스펙트럼 반경(SR, 68.13%), 뉴런의 숫자(N, 9.9%) 그리고 이 두 변수의 상호작용(19.83%)을 찾아낼 수 있었다. 최적화를 통하여 평균 백분율 오차가 5% 이하인 수명 예측 결과를 확인할 수 있었다⁸⁴.

자료 기반 방식의 하나로 Summation Wavelet-Extreme Learning Machine (SW-ELM) 알고리즘이 사용되었다^{38,44,83}. 이 방식은 웨이블릿 변환과 신경망을 예측 방법을 복합하여 사용한 것이다. 예전의 지표로 스택 전압을 사용하였다. 전압 신호의 전처리 과정에서 웨이블릿 이론이 적용되었으며 학습과 예측을 위하여 신경망이 이용되었다. 제한조건으로 열화에 의하여 비가역적으로 전압이 계속 감소하는 것을 알고리즘에 반영하였다. 이것은 ELM에서 나타날 수 있는 초기의 신경망의 가중치와 전이항의 임의 추정에 따른 오차와 반복적인 계산에 따른 누적 오차를 줄여 예측의 정확도를 높이기 위한 것이다. 제한조건이 주어진 SW-ELM과 다른 방식의 성능을 비교하기 위하여 수명이 1,150시간과 1,750시간인 2개의 PEFC 스택을 이용하여 수명의 절반 정도에서 ELM, SW-ELM 그리고 Leaky-Echo State Network (Leaky-ESN) 방식을 적용한 결과를 비교하였다. 제한조건이 없는 경우 SW-ELM 방식이 실제 값에 가장 가까운 결과를 보여 주었지만 3가지 방식 모두 잔여 수명을 정확하게 예측하지 못하였다. 이것은 자료가 충분하지 않을 경우나 제한조건이 주어지지 않을 경우 정확한 예측이 어렵다는 것을 보여준 결과이다. 제한조건이 주어진 경우 3가지 방식 모두 잔여 수명을 예측할 수 있었는데, 2가지 스택 모두 SW-ELM 방식이 가장

정확한 결과를 보여 주었다⁴⁴.

발표된 입자 필터 방법⁸¹)을 개선하기 위하여 교란과 가역적인 전압 회복을 고려한 복합방식이 제안되었다⁸⁵. 열화 지표로서는 전력 변화 값을 사용하여 RUL을 추정하였다. 전력 열화($x(t)$, 식 [16]), 전력 열화의 가속화($v(t)$, 식 [17])와 전력 열화 복구($Rec(t)$, 식 [18])를 대표하는 3개의 모델식을 복합적으로 사용하였으며 3단계 입자 필터링을 통하여 해당 상태식의 계수를 학습하여 RUL 추정에 사용하였다.

$$x(t) = a_1 \ln(t) - v(t) + c_1 \quad (16)$$

$$v(t) = -a_2 \exp(b_2 t) + c_2 \quad (17)$$

$$Rec(t) = a_3 \exp(b_3 t) + c_3 \exp(d_3 t) \quad (18)$$

연료전지의 경우 열화가 시작되면 가속화되는 경향이 있으므로 식 (16) 열화식의 선형 부분인 속도 부분을 별도의 지수 함수를 통하여 예측하였다. 스택의 실험 결과를 이용하여 전력의 열화 경향과 RUL을 추정하였다. 비록 식 (18)로 고려하였지만 단 시간에 심하게 변하는 회복 가능한 성능 저하 현상으로 인하여 전체적인 열화 추이의 예측은 완벽하지는 않은 결과를 보여주었다. 그러나 RUL의 경우 단기간의 가역 열화보다는 비가역 열화가 지배하기 때문에 전체적인 열화 추이와 달리 실제 수명시간 1,748시간을 불확실성의 예측을 포함하여 ± 28 시간 이내 오차의 정확도로 추정하였다⁸⁵. 추가된 입자 필터를 이용하여 앞에서 분석한⁸⁵) 전력 열화 예측의 정확도를 높이기 위한 연구가 수행되었다⁸⁶. 앞에서 분석한 바와 같이 가역과 비가역 열화를 포함한 열화추이를 정확하게 예측하기 위하여 단기간의 가역적 전력 변화의 예측이 중요하며 이를 위하여 지수 함수를 포함하여 3가지 형태의 식이 시도되었다. 가역적 모델의 정확도를 높이기 위하여 등가 회로 모델을 제시하였으며, 계산된 분극 저항 값의 함수로 지수함수의 계수를 정하는 방법을 제시하였다. 열화 예측을 위한 기본 상태방정식으로 2차원 다항식을

사용하였다.

본드 그래프를 이용하여 해석적 중첩 관계식(analytical redundancy relations, ARR)을 도출하여 열화 예측에 사용하였다⁸⁷⁾. 연료전지 시스템을 본드 그래프를 이용하여 연료공급 부분, 화학반응 부분, 전기화학(스택 전압) 부분 그리고 열 부분으로 구분하여 관계식으로 표시하였다. 열화 예측을 위해서는 전기화학 부분이 사용되었으며 IV-특성식 형태의 ARR를 이용하여 잔여 수명을 예측하였다. 스택 부분 ARR에서 저항과 한계전류 밀도를 시간의 함수로 표시하였으며 계수를 입자 필터를 이용하여 계산하였다. 결과적으로 도출된 스택의 해석적 중첩식은 식 (8)의 IV-특성식과 동일한 형태이며, 열화를 나타내는 변수는 식 (9)-(11)과 동일한 선형식을 사용하였다. 잔여 수명 예측 결과는 확장된 칼만 필터(EKF)와 비교하여 제시하였다. 정격부하 상태에서 EKF를 적용한 경우 평균 제곱근 오차(RMSE)는 9.8%였으며 PF를 적용한 경우 RMSE 오차는 4.2% 정도로 정확도가 높았다. PF 방식은 입자(particle) 수에 따라 정확도와 계산시간에 차이가 있으며 900시간의 자료를 위한 계산시간에 있어서 PF 방식은 입자 수 2,000개를 사용하여 6시간 45분이 소요되어, 5초 정도의 EKF 방식에 비하여 당한 계산시간이 필요한 것을 알 수 있다. EKF와 오차 수준이 같은 입자 수 100개인 경우 6분 45초(RMSE 9.02%)가 소요되었다.

두 가지 서로 다른 방식으로 열화 동향을 예측하여 가중치를 이용하여 합산하는 방식이 새로운 복합 방식으로 제시되었다⁸⁸⁾. 스택 전압의 열화를 예측하기 위해 지수 함수 형태의 회귀식과 비선형자동회귀 신경망(nonlinear autoregressive neural network, NARNN)을 동시에 사용하였다. 입자 필터는 상태방정식으로 지수함수 회귀식의 계수를 구하기 위하여 사용하였다. 지수함수 회귀식은 장기 성능 예측에는 우수하지만 열화의 국부적 비선형과 불확실한 특성의 예측에 어려움이 있으며, NARNN 예측은 단기와 중기에서의 비선형성과 불확실성의 예측 성능은 우수하지만 예측 자료의 변동으로 인하여 장기적 예측이 부정확하다. 두 가지 방법의 장점을 취하기 위해서는 학습과

예측을 위한 시간 영역 결정과 결과 합산에 필요한 가중치의 최적화가 필요하다. 전체의 이력보다는 최근의 동향 자료를 반영하여 학습과 예측의 정확도를 높이기 위하여 전체 시간대를 몇 개의 이동 윈도우로 구분하였으며 각 윈도우에서 학습, 검증, 예측 구간을 구분하였다. 적용 스택과 구분된 윈도우에 따라 다소 차이가 있었지만 각각의 독립적인 예측방법은 비교 대상인 기존의 ANFIS⁴⁵⁾, autoregressive integrated moving average (ARIMA) 방식과 정확도가 거의 동일하였으나 복합하였을 경우 정확도가 약 20% 정도 향상되었다.

5. 결론

본 논문에서는 PEFC 시스템의 예진을 위한 열화 예측과 이를 이용한 유효 잔여 수명 추정에 대한 최신 기술을 정리하였다. PEFC 시스템의 전반적인 수명 향상과 운영의 최적화를 위해서 실시간 고장 검출 및 진단 기술과 더불어 필요한 기술이다. 연료전지에 대한 정확한 예진 기술을 개발하기 위해서는 방법에 따라 차이가 있지만 열화를 일으키는 원인과 현상에 대한 심도 있는 이해가 필요하므로 대표적인 스택 요소인 전극, 전해질 열화에 대해 개략적으로 정리하였다. 그동안 PEFC의 열화를 일으키는 주요한 원인과 현상에 대해서는 많은 연구가 이루어져 왔지만, 외부 환경과 운전조건을 포함하여 다양한 원인에 의한 열화와 열화가 가속화되어 손상을 일으키는 현상 등에 대해서는 정량적으로 더 많은 분석이 필요한 상태이다. 열화와 이에 따른 손상 그리고 이를 일으키게 하는 운전조건과 원인에 대한 구조가 밝혀지면 상태 기반 유지 보수 기술을 포함하여 수명 연장과 운영비를 절감시키는 데 도움이 될 것이다. 기존의 열화 구조 연구는 원인이 되는 조건을 주고 성능 저하 현상을 파악하는, 즉 원인에서 현상을 파악하는 것임에 반하여, 예진은 외부에서 측정 가능한 현상에서 열화와 손상을 일으키는 원인과 위치 진단을 수행하고 진단 결과와 그동안의 운전 자료를 바탕으로 미래에 벌어질 현상인 열화 진행 정도를

예측해야 한다. 열화 구조 연구 결과가 기본적으로 사용되어야 하지만 현상을 일으킬 수 있는 다양한 조건에서 핵심적 원인을 파악하고, 이 원인을 바탕으로 미래 성능을 예측해야 하므로 단순 열화 구조 연구보다 어려운 기술이다.

예진의 방법으로 모델 기반 접근방법, 자료 기반 방법과 그리고 두 가지 방식을 동시에 사용하는 복합방식이 연구되었으며 예측의 정확도 측면에서는 복합방식이 우수한 것으로 발표되었다. 실시간 고장 검출 및 진단과 달리 예진의 경우 수명주기의 장시간을 예측하는 것이므로 학습과 예측을 위한 계산이 off-line 상태에서 이루어질 수 있으므로 방법에 따른 연산시간 차이는 고려하지 않은 것이다.

최신의 예측 기술이 적용된 다양한 연구가 수행되었지만, 주로 정상으로 가정된 운전 상태에서 발생된 열화를 예측하는 것으로, 손상을 발생시키거나 열화를 가속화시킬 수 있는 다양한 운전 및 환경조건에서의 예진 연구는 거의 없는 상태이다. 진단 방법 개발에 앞서 다양한 조건에서의 열화 이력 정보가 필요하다. 이를 위해서는 장기운전 실험은 물론 최종 사용자인 제조업체와 운영자 등이 확보한 실제 운전 정보의 공유가 필요하다. 또한 본 논문에서는 다루지 않았지만 가속 실험 등 신속하게 실질적 자료를 확보하기 위한 연구도 더 필요한 상태이다. 본 논문은 지금까지 학술적으로 연구된 PEFC 스택에 적용된 예진 기술을 정리한 것으로 현재까지의 적용된 자료와 기술 분석을 통하여 앞으로의 실질적인 개발 방향을 설정하는데 도움이 될 것이다.

후 기

본 연구는 2017년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제이다(No. 20173010032150).

References

1. Fuji Economy, 2016 outlook of fuel cell technology · market, 2016, ISBN 978-4-8349-1922-6.
2. Korea Economic ministries, "Implementation strategy of boosting new energy industry and key technologies development" to cope with climate change, 2015, Economic Ministers' Meeting.
3. J. Lamrminie and A. Dicks, "Fuel Cell System Explained", John Wiley, 2003.
4. F. Barbir, "PEM fuel cells: theory and practice", Academic Press Series series editor, Elsevier Academic Press, 2005.
5. C. S. Spiegel, "Design & Building Fuel Cells", McGraw-Hill, 2007.
6. V. Das, S. Padmanaban, K. Venkitusamy, R. Selvamuthukumar, F. Blaabjerg, and P. Siano, "Recent advances and challenges of fuel cell based power system architectures and control - A review", Renewable and Sustainable Energy Reviews, Vol. 73, 2017, pp. 10-18.
7. Y. Wang, K. S. Chen, J. Mishler, S. C. Cho, and X. C. Adroher, "A review of polymer electrolyte membrane fuel cells: Technology, applications, and needs on fundamental research", Applied Energy, Vol. 88, 2011, pp. 981-1007.
8. J. Garce and L. Jörissen, "Applications of Fuel Cell Technology: Status and Perspectives", The Electrochemical Society Interface, 2015, pp. 39-43.
9. F. A. Bruijn, "PEM Fuel Cells Durability and Cost, ECN-L-09-177, 2009; Presented at the Hydrogen and Fuel Cells in the Nordic Countries", 24-26 November 2009, Oslo Norway.
10. T. Fletcher, R. Thring, and M. Watkinson, "An Energy Management Strategy to concurrently optimise fuel consumption & PEM fuel cell lifetime in a hybrid vehicle, international journal of hydrogen energy", Vol. 41, 2016, pp. 21503-21515.
11. X. Zhang and P. Pisu, "Prognostic-oriented fuel cell catalyst aging modeling and its application to health-monitoring and prognostics of a pem fuel cell, International Journal of Prognostics and Health Management", Vol. 5, 2014, pp. 1-16.
12. M. Zatoń, J. Rozière, and D. J. Jones, "Current understanding of chemical degradation mechanisms of perfluorosulfonic acid membranes and their mitigation strategies: a review", Sustainable Energy Fuels, Vol. 1, 2017, pp. 409-438.
13. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. Péra, and N. Zerhouni, "Prognostics and Health Management of PEMFC—State of the art and remaining challenges", International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 38, 2013, pp. 15307-15317.
14. The Department of Energy Fuel Cell Technology Office, "Multi-Year Research, Development, and Demonstration Plan", 2016.
15. The Department of Energy Fuel Cell Technology Office, "DOE Technical Targets for Fuel Cell Systems for Stationary (Combined Heat and Power) Applications", [https://energy.gov/eere/fuelcells/doe-technical-targets-fuel-cell-sys-](https://energy.gov/eere/fuelcells/doe-technical-targets-fuel-cell-sys)

- tems-stationary-combined-heat-and-power.
16. The Department of Energy Fuel Cell Technology Office, "DOE Technical Targets for Fuel Cell Systems and Stacks for Transportation Applications", <https://energy.gov/eere/fuel-cells/doe-technical-targets-fuel-cell-systems-and-stacks-transportation-applications>.
 17. NEDO, Road Map of fuel cell and hydrogen technology development, 2010, http://www.nedo.go.jp/library/battery_hydrogen.html.
 18. D. P. Wilkinson and J. St-Pierre, "Handbook of fuel cells: chapter 47 Durability", John Wiley, Vol. 3, 2003, pp. 611-626.
 19. R. Patton, P. Frank, and R. Clark, "Fault Diagnosis in Dynamic Systems Theory and Application", 1989 Prentice Hall International Ltd., ISBN 0-13-308263-6.
 20. N. Trapani, M. Macchi, and L. Fumagalli, "Risk driven engineering of Prognostics and Health Management systems in manufacturing", IFAC-PapersOnLine, Vol. 48-3, 2015, pp. 995-1000.
 21. Q. Qian and P. Lin, "Safety risk management of underground engineering in China: Progress, challenges and strategies", Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, Vol. 8, 2016, pp. 423-442.
 22. A. W. Righi, T. A. Saurin, and P. A. Wachs, "Systematic literature review of resilience engineering: Research areas and a research agenda proposal", Reliability Engineering and System Safety, Vol. 141, 2015, pp. 142-152.
 23. S. Roe and D. Mba, "The environment, international standards, asset health management and condition monitoring: An integrated strategy", Reliability Engineering and System Safety, Vol. 94, 2009, pp. 474-478.
 24. D. Montalvao, N. M. M. Maia, and A. M. R. Ribeiro, "A review of vibration-based structural health monitoring with special emphasis on composite materials", Shock Vib Dig., Vol. 38, No. 4, 2006, pp. 295-326.
 25. W. Staszewski, C. Boller, and G. R. Tomlinson, "Health monitoring of aerospace structures: smart sensor technologies and signal processing", John Wiley & Sons, 2004.
 26. Z. Hameed, Y. Hong, Y. Cho, S. Ahn, and C. Song, "Condition monitoring and fault detection of wind turbines and related algorithms: a review", Renew Sustain Energy Rev, Vol. 13, No. 1, 2009, pp. 1-39.
 27. Y. Sinha and J. Steel, "A progressive study into offshore wind farm maintenance optimisation using risk based failure analysis", Renew Sustain Energy Rev, Vol. 42, 2015, pp. 735-742.
 28. A. Guillén, A. Crespo, M. Macchi, and J. Gómez, "On the role of Prognostics and Health Management in advanced maintenance systems", Production Planning & Control, Vol. 27, No. 12, 2016, pp. 991-1004.
 29. T. Sutharssan, S. Stoyanov, C. Bailey, and C. Yin, "Prognostic and health management for engineering systems: a review of the data-driven approach and algorithms", The Journal of Engineering, 2015.
 30. G. Vachtsevanos, F. Lewis, M. Roemer, A. Hess, and B. Wu, "INTELLIGENT FAULT DIAGNOSIS AND PROGNOSIS FOR ENGINEERING SYSTEMS", John Wiley & Sons, Inc., 2006, ISBN 978-0-471-72999-0.
 31. K. Goebel, A. Saxena, M. Daigle, and J. Celaya, "Roychoudhury I, Clements S, Introduction to Prognostics", http://ftp.phmsociety.org/sites/phmsociety.org/files/Tutorial_Prognostics.pdf.
 32. B. Sun, S. Zeng, R. Kang, and M. Pecht, "Benefits and Challenges of System Prognostics, IEEE Transactions on Reliability", Vol. 61, No. 2, 2012, pp. 323-335.
 33. N. Hölzel, T. Schilling, and V. Gollnick, "An Aircraft Lifecycle Approach for the Cost-Benefit Analysis of Prognostics and Condition-based Maintenance based on Discrete-Event Simulation", ANNUAL CONFERENCE OF THE PROGNOSTICS AND HEALTH MANAGEMENT SOCIETY, 2014, pp. 1-16.
 34. N. Hölzel and V. Gollnick, "Cost-benefit Analysis of Prognostics and Condition-based Maintenance Concepts for Commercial Aircraft Considering Prognostic Errors", ANNUAL CONFERENCE OF THE PROGNOSTICS AND HEALTH MANAGEMENT SOCIETY, 2015, pp. 1-16.
 35. S. Sheng, "Prognostics and Health Management of Wind Turbines: Current Status and Future Opportunities", NREL, 2015, <https://www.nrel.gov/docs/fy16osti/65605.pdf>.
 36. H. He, J. Zhao, and C. Xu, "Cost-benefit Model for PHM", Procedia Environmental Sciences, Vol. 10, 2011, pp. 759-764.
 37. T. Sutharssan, D. Montalvao, Y. Chen, W. Wang, C. Pisac, and H. Elemara, "A review on prognostics and health monitoring of proton exchange membrane fuel cell", Renewable and Sustainable Energy Reviews, Vol. 75, 2017, pp. 440-450.
 38. K. Javed, R. Gouriveau, N. Zerhouni, and D. Hissel, "Improving accuracy of long-term prognostics of PEMFC stack to estimate remaining useful life. in: Industrial Technology (ICIT)", 2015 IEEE International Conference on, IEEE, 2015, pp. 1047-1052.
 39. M. Fowler, J. C. Mann, J. C. Amphlett, B. A. Preppy, and P. R. Robberge, "Handbook of fuel cells", John Wiley, Vol. 3, 2003, pp. 663-677.
 40. L. Placca and R. Kouta, "Fault tree analysis for PEM fuel cell degradation process modelling", Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 36, 2011, pp. 12393-12405.
 41. M. Whiteley, S. Dummet, and L. Jackson, "Failure Mode and Effect Analysis, and Fault Tree Analysis of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells", Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 41, 2016, pp. 1187-1202.
 42. A. Colliera, H. Wang, X. Zi, Z.J. Yuan, and D. Wilkinsona,

- “Degradation of polymer electrolyte membranes”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 31, No. 13, 2006, pp. 1838-1854.
43. B. Huang, Y. Di, C. Jin, and J. Le, “REVIEW OF DATA-DRIVEN PROGNOSTICS AND HEALTH MANAGEMENT TECHNIQUES : LESSONS LEARNED FROM PHM DATA CHALLENGE COMPETITIONS”, Conference: Machine Failure Prevention Technology, 2017.
 44. K. Javed, R. Gouriveau, N. Zerhouni, and D. Hissel, “Data-driven Prognostics of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Stack with constraint based Summation-Wavelet Extreme Learning Machine”, 6th International Conference on Fundamentals & Development of Fuel Cells, FDFC 2015, France, Toulouse.
 45. R. Silva, R. Gouriveau, S. Jemei, D. Hissel, L. Boulon, and K. Agbossou, “Proton exchange membrane fuel cell degradation prediction based on adaptive neurofuzzy inference systems”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 39, No. 21, 2014, pp. 11128-11144.
 46. C. Okoh, R. Roy, and J. Mehnen, “Predictive maintenance Modelling for Through-Life Engineering Services”, *Procedia CIRP*, Vol. 59, 2017, pp. 196-201.
 47. J. Wu, X. Z. Yuan, J. J. Martin, H. Wang, J. Zhang, and J. Shen, “A review of PEM fuel cell durability: degradation mechanisms and mitigation strategies”, *J. Power Sources*, Vol. 184, No. 1, 2008, pp. 104-119.
 48. T. Ishimoto and M. Koyama, “Review of Molecular-Level Mechanism of Membrane Degradation in the Polymer Electrolyte Fuel Cell”, *Membranes (Basel)*, Vol. 2, No. 3, 2012, pp. 395-114.
 49. F. De Bruijn, “PEMFC Lifetime and Durability an overview”, Thessaloniki, Sept. 21, 2011, https://www.sintef.no/global-assets/upload/materialer_kjemi/energikonvertering-og-materialer/bilder/pemfc-overview-thessaloniki-fa-debruijn---f.pdf.
 50. F. A. de Bruijn, V. A. T. Dam, and G. J. M. Janssen, “Review: Durability and Degradation Issues of PEM Fuel Cell Components”, *FUEL CELLS*, Vol. 8, No. 1, 2008, pp. 3-22.
 51. D. Seo, J. Lee, S. Park, J. Rhee, S. W. Choi, and Y. G. Shul, “Investigation of mea degradation in pem fuel cell by on/off cyclic operation under different humid conditions”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 36, No. 2, 2011, pp. 1828-1836.
 52. E. Endoh, S. Terazono, H. Widjaja, and Y. Takimoto, “Degradation study of mea for pemfcs under low humidity conditions”, *Electrochem Solid-State Lett*, Vol. 7, No. 7, 2004, pp. A209-A211.
 53. V. A. Sethuraman, J. W. Weidner, and A. T. Haug, “Pemberton M, Protsailo LV. Importance of catalyst stability vis-à-vis hydrogen peroxide formation rates in pem fuel cell electrodes”, *Electrochim Acta*, Vol. 54, No. 23, 2009, pp. 5571-5582.
 54. P. Pei and H. Chen, “Main factors affecting the lifetime of Proton Exchange Membrane fuel cells in vehicle applications: A review”, *Applied Energy*, Vol. 125, 2014, pp. 60-75.
 55. S. Enz, T. A. Dao, M. Messerschmidt, and J. Scholta, “Investigation of degradation effects in polymer electrolyte fuel cells under automotive-related operating conditions”, *Journal of Power Sources*, Vol. 274, No. 15, 2015, pp. 521-535.
 56. N. Dyantyi, A. Parsons, C. Sita, and S. Pasupathi, “PEMFC for aeronautic applications: A review on the durability aspects”, *Open Eng.*, Vol. 7, 2017, pp. 287-302.
 57. J. Xie, D. Wood, K. More, P. Atanassov, and R. L. Borup, “Durability of PEFCs at High Humidity Conditions”, *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 152, 2005, pp. 1011-1020.
 58. Y. Lee, K. Lee, J. Yun, and J. Byun, “A Study of the Electrode Catalyst Migration and Aging Mechanism of PEMFC”, *Trans. of Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 23, No. 3, 2012, pp. 256-263.
 59. S. Maass, F. Finsterwalder, G. Frank, R. Hartmann, and C. Merten, “Carbon support oxidation in PEM fuel cell cathodes”, *J. Power Sources*, Vol. 176, 2008, pp. 444-451.
 60. A. Taniguchi, T. Akita, K. Yasuda, and Y. Miyazaki, “Analysis of degradation in PEMFC caused by cell reversal during air starvation”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 33, 2008, pp. 2323-2329.
 61. J. Shan, R. Lina, S. Xia, D. Liua, and Q. Zhang, “Local resolved investigation of PEMFC performance degradation mechanism during dynamic driving cycle”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 41, No. 7, 2016, pp. 4239-4250.
 62. W. Schmittinger and A. Vahidi, “A review of the main parameters influencing long-term performance and durability of PEM fuel cells”, *Journal of Power Sources*, Vol. 180, No. 1, 2008, pp. 1-14.
 63. S. Yu, X. Li, J. Li, S. Liu, W. Lu, Z. Shao, and B. Yi, “Study on hydrophobicity degradation of gas diffusion layer in proton exchange membrane fuel cells”, *Energy Conversion and Management*, Vol. 76, 2013, pp. 301-306.
 64. J. Park, H. Oh, J. Cho, K. Min, E. Lee, and J. Y. Jyoung, “Study on the Durability Characteristics of the PEM Fuel Cells having Gas Diffusion Layer with Different Micro Porous Layer Penetration Thicknesses”, *Trans. of Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 24, No. 3, 2013, pp. 256-263.
 65. M. Jouin, “Failure prognostics in a particle filtering framework – Application to a PEMFC stack”, http://www2.irccyn.ec-nantes.fr/CE2/.../7_M_Jouin_20140612.pdf.
 66. K. Wang, J. Tian, M. Pecht, and A. Xu, “A Prognostics and Health Management Based Method for Refurbishment Decision Making for Electromechanical Systems”, *IFAC-PapersOnLine*, Vol. 48, No. 3, 2015, pp. 454-459.
 67. J. Luo, M. Namburu, K. Pattipati, L. Qiao, M. Kawamoto,

- and S. Chigusa, "Model-based Prognostic Techniques", AUTOTESTCON 2003, IEEE Systems Readiness Technology Conference, Proceedings.
68. C. Sankavaram, B. Pattipati, A. Kodali, K. Pattipati, M. Azam, S. Kumar, and M. Pecht, "Model-based and Data-driven Prognosis of Automotive and Electronic Systems", 5th Annual IEEE Conference on Automation Science and Engineering Bangalore, India, August 22-25, 2009.
 69. T. Van and B. S. Yang, "Machine fault Diagnosis and Prognosis: The state of the Art", International Journal of Fluid Machinery and Systems, Vol. 2, No. 1, 2009, pp. 61-71.
 70. T. Biagetti and E. Sciubb, "Automatic diagnostics and prognostics of energy conversion processes via knowledge-based systems", Energy, Vol. 29, No. 12-15, 2004, pp. 2553-2572.
 71. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. C. Péra, and N. Zerhouni, "Phm of proton exchange membrane fuel cells-a review", Chemical Engineering Transactions, Vol. 33, 2013, p. 1009.
 72. W. Y. Lee, G. G. Park, Y. J. Sohn, S. G. Kim, and M. Kim, "Fault Detection and Diagnosis Methods for Polymer Electrolyte Fuel Cell System", Trans. of Korean Hydrogen and New Energy Society, Vol. 28, No. 3, 2017, pp. 252-272.
 73. X. Zhang and P. Pisu, "An unscented kalman filter based approach for the health monitoring and prognostics of a polymer electrolyte membrane fuel cell", Annual conference of the prognostics and health management, 2012.
 74. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. C. Péra, and N. Zerhouni, "Degradations analysis and aging modeling for health assessment and prognostics of PEMFC", Reliability Engineering and System Safety, Vol. 148, 2016, pp. 78-95.
 75. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. C. Péra, and N. Zerhouni, "PEMFC aging modelling for prognostics and health assessment", IFAC-PapersOnLine, Vol. 48, No. 21, 2015, pp. 790-795.
 76. E. L. Lechartier, M. C. Péra, and R. Gouriveau, "Proton exchange membrane fuel cell behavioral model suitable for prognostics", Int. J. Hydrog Energy, Vol. 40, No. 26, 2015, pp. 8384-8397.
 77. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. C. Péra, and N. Zerhouni, "Prognostics of PEM fuel cells under a combined heat and power profile", IFAC-PapersOnLine, Vol. 48, No. 3, 2015, pp. 26-31.
 78. M. Bressel, M. Hilairt, D. Hissel, and B. O. Bouamama, "Extended Kalman Filter for prognostic of Proton Exchange Membrane Fuel Cell", Applied Energy, Vol. 164, 2016, pp. 220-227.
 79. A. J. Headley, M. Gross, and D. Chen, "Membrane Electrolyte Assembly Health Estimation Method for Proton Exchange Membrane Fuel Cells", J. Electrochem. En. Conv. Stor, Vol. 14, No. 4, 2017, p. 041008.
 80. H. Liu, J. Chen, C. Y. Zhu, H. Su, and M. Hou, "Prognostics of Proton Exchange Membrane Fuel Cells Using A Model-based Method", IFAC-PapersOnLine, Vol. 50, No. 1, 2017, pp. 4757-4762.
 81. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. C. Péra, and N. Zerhouni, "Prognostics of pem fuel cell in a particle filtering framework", Int. J. Hydrog Energy, Vol. 39, No. 1, 2014, pp. 481-494.
 82. S. Morando, S. Jemei, D. Hissel, R. Gouriveau, and N. Zerhouni, "ANOVA method applied to pemfc ageing forecasting using an echo state network", Mathematics and Computers in Simulation, Vol. 131, 2017, pp. 283-294.
 83. K. Javed, R. Gouriveau, N. Zerhouni, and D. Hissel, "Prognostics of proton exchange membrane fuel cells stack using an ensemble of constraints based connectionist networks", J. Power Sources, Vol. 324, 2016, pp. 745-757.
 84. S. Morando, S. Jemei, R. Gouriveau, N. Zerhouni, and D. Hissel, "ANOVA method applied to pemfc ageing forecasting using an echo state network", In Proceedings of the 11th international conference on modeling and simulation of electric machines, converters and systems (ElectrIMACS 2014), 2014, pp. 652-657.
 85. M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M. C. Péra, and N. Zerhouni, "Prognostics of proton exchange membrane fuel cell stack in a particle filtering framework including characterization disturbances and voltage recovery", IEEE International Conference on Prognostics and Health Management, PHM'2014-Enhancing Safety, Efficiency, Availability and Effectiveness of Systems through PHM Technology and Application, pp. 1-6.
 86. D. Zhang, C. Cadet, C. Bérenguer, and N. Yousfi-Steiner, "Some Improvements of Particle Filtering Based Prognosis for PEM Fuel Cells", IFAC-PapersOnLine, Vol. 49, No. 28, 2016, pp. 162-167.
 87. S. J. Mayank, B. Mathieu, O. B. Belkacem, and D. T. Genevieve, "Particle filter based hybrid prognostics of proton exchange membrane fuel cell in bond graph framework", Computers and Chemical Engineering, Vol. 95, 2016, pp. 216-230.
 88. D. Zhou, F. Gao, E. Breaz, A. Ravey, and A. Miraoui, "Degradation prediction of PEM fuel cell using a moving window based hybrid prognostic approach", Energy, Vol. 138, No. 11, 2017, pp. 1175-1186.