

고분자 전해질 연료 전지를 위한 고장 검출 및 진단 기술

이원용¹ · 박구곤^{1,2} · 손영준^{1,2} · 김승곤² · 김민진^{1,2,†}

¹한국에너지기술연구원 연료전지연구실, ²과학기술연합대학원대학교 신에너지 및 시스템 기술

Fault Detection and Diagnosis Methods for Polymer Electrolyte Fuel Cell System

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

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

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

†Corresponding author :
minjin@kier.re.kr

Received 1 June, 2017

Revised 19 June, 2017

Accepted 30 June, 2017

Abstract >> Fuel cell systems have to satisfy acceptable operating reliability, sufficient lifetime and price to enter the market in competition with existing products. Fuel cells are made up of complex element technologies and various problems related to the failure of the components can affect the reliability and safety of the system. This problem can be overcome by introducing a monitoring and supervisory control system in addition to automatic control to detect the failure of the fuel cell quickly and properly diagnose the performance degradation. For the fault detection and diagnosis of polymer electrolyte fuel cells, the model based method using the theoretical superposition value and the non-model based method of checking the signal tendency or the converted signal characteristic can be applied. The methods analyzed in this paper can contribute to the development of integrated monitoring and control technology for the whole system as well as the stack.

Key words : Polymer Electrolyte Fuel Cell, PEFC(고분자 전해질 연료 전지), Faults detection and diagnosis methods(고장 검출 및 진단 기술), Model based diagnosis method(모델 기반 진단 기술), Non-model based diagnosis method(비모델 진단 방식)

1. 서론

세계적으로 환경오염과 지구온난화에 직접적으로 영향을 미치는 에너지 수요가 지속적으로

증가하고 있어 지속가능 측면에서 에너지와 환경 문제를 동시에 해결하기 위한 노력이 시급한 상태이다. 환경에 대한 위기의식은 제21차 유엔기후 변화협약 당사국총회, COP 21에 반영되어 한국의

BAU 대비 37% 감축 목표 제시를 비롯하여 2016년 12월 기준 197개국 중 142개국이 비준에 동의하는 등 온실가스 배출을 통제해야만 한다는 인류 전체의 공감대를 형성되고 있다¹⁾. 저탄소 경제로 전환하기 위해서 신재생에너지 보급 확대, 에너지 효율개선 강화가 필수적이며 선진국을 중심으로 신성장 동력산업으로 육성하기 위한 기술 개발이 경쟁적으로 진행되고 있다.

기후변화 대응을 위한 신재생에너지 중 하나가 수소에너지 기술이다. 수소를 효과적으로 전기로 변환하기 위한 장치가 연료전지(FC) 시스템이다. FC 시스템은 연료의 화학 에너지를 전기 에너지로 전환시키는 전기화학장치로 높은 전환 효율과 친환경성을 특징으로 한다. 미래를 위한 유망한 대안이 될 수 있다. 사용된 전해질에 따라 고분자전해질연료전지(PEFC), 알칼리연료전지(AFC), 인산형연료전지(PAFC), 용융탄산염연료전지(MCFC), 고체산화물연료전지(SOFC)로 구분될 수 있다. 본 논문의 대상인 PEFC는 낮은 작동 온도로 인한 짧은 시동시간과 및 높은 전력 밀도로 인해 현재 수백 와트급 가정용 발전시스템으로부터 100 kW급 전기자동차 전원까지 분산전원과 수송 분야에 적합하게 적용될 수 있다^{2,3)}. PEFC는 완전히 성숙된 기술이 아니며 성공적으로 보급시키려면 현재 수준보다 내구성과 신뢰성이 향상되어야 하며, 운영 및 유지비용이 낮아져야 한다. 미국 에너지부(DOE)는 자동차용 PEFC의 상용화 목표로 기존의 경쟁제품을 고려하여 스택 가격은 kW 당 \$30, 수명은 5,000시간을 설정하였으며, 발전용으로는 kW 당 \$1,000-1,500과 약 60,000-80,000시간의 내구성을 제시하였다⁴⁾. 일본은 로드맵으로 자동차용 고분자전해질연료전지의 2020년까지의 목표로 차량효율 60%, 내구성 15년(5,000시간)을 제시하였다. 스택 가격 목표는 45만엔이며 2030년까지 도달 목표는 25만엔이다. 발전용 고분자전해질연료전지의 2020년까지 목표는 내구성 9만시간 20만대 생산기준으로 가격 40-50만엔이다⁵⁾. 자동차용 연료전지의 경우 2015년 기준 수명이 3,900시간 정도로 상용화 목표에 이에 미치지 못하

고 있는 상태이다⁴⁾. 내구성 향상과 운영경비의 최적화를 위해서는 하드웨어를 위한 설계 및 제조기술 개발과 더불어 성능 진단 및 최적 유지기술의 개발이 필요하다. 연료전지는 내·외부의 사소한 결함이 스택의 영구손상으로 파급되기 쉬운 구조이다. 스택의 내구성 향상과 안전한 운전을 보장하기 위해서는 실시간 감시제어를 통해 주변장치 및 스택 요소의 고장이나 결함이 조기에 발견되어야 하며 이를 기반으로 필요시 유지보수가 이루어져야 할 것이다.

고장검출에서 처리까지는 고장 검출, 진단, 평가 그리고 결정 및 조치의 4단계로 구분하여 나타낼 수 있다⁶⁻⁸⁾. 본 논문에서는 PEFC와 관련하여 우선적으로 첫 번째 두단계인 고장 검출과 진단(fault detection and diagnosis, FDD) 기술에 관한 최신 기술을 분석하였다. 논문은 첫 번째 연료전지의 이해를 돕기 위한 시스템 구성, 두 번째 고장 트리를 중심으로 한 시스템, 부위(sub-system) 그리고 부품 수준의 손상과 성능저하 현상 분석, 마지막으로 PEFC에 적용된 고장 검출 및 진단 방법으로 구성하였다. 고장 검출 및 진단 방법으로는 모델 기반 방식과 비모델 방식으로 구분하여 원리와 적용사례를 분석하였다.

2. 연료전지 시스템

연료전지는 에너지 변환과정에서 전기, 물 및 열만 생산하는 청정 고효율 전력원이다. 본 연구의 대상인 PEFC는 다른 연료전지에 비해 높은 전력 밀도와 낮은 운전 온도로 인해 빠른 시동성의 장점을 가지고 있어 운송 분야뿐만 아니라 소형발전 및 휴대용 전원으로 효과적으로 적용되고 있다^{2,3)}. 연료전지 개발을 위해 전극, 전해질 그리고 분리판 등의 소재와 시스템 및 스택의 최적 설계 기술에 대해 다양한 연구가 이루어 이루어지고 있다. 본격적인 보급을 위해서는 수명과 가용성을 향상시키기 위해 내구성, 신뢰성과 더불어 유지 및 정비성의 개선이 필요하다. 이를 위해서는 자동제어와 더

불어 부품 손상과 성능저하와 같은 비정상 상태를 가능한 한 빨리 감지하고 처리할 수 있는 고장 검출 및 진단기술이 필요하다. 연료전지는 다른 신재생에너지 시스템과 달리 가스와 전기 관련 장치가 포함되어 있는 복잡한 시스템으로 Fig. 1과 같이 연료전지 본체(스택)를 중심으로, 스택에 수소를 공급하는 연료개질기(또는 연료공급장치), 공기공급장치, 스택의 온도와 습도를 제어하기 위한 열 및 물관리 시스템 그리고 스택의 DC 출력을 AC로 변환시키기 위한 전력변환기 등으로 구성된다.

연료전지 본체인 스택은 연료공급장치에서 들어오는 수소 함유 가스나 정제된 수소와 공기 중의 산소로 직류 전기와 물 및 부산물인 열을 발생시키는 전기화학장치이다. 핵심부위인 전극전해질접합체(MEA)는 양극과 음극 촉매 사이에 전해질이 삽입된 샌드위치 구조로 구성된다. 자동차의 경우 Fig. 1과 같이 직접 탑재된 저장장치에서 수소를 공급하게 되며 건물/주택용의 경우 연료개질기를 통해 수소가 함유된 연료가 공급된다. 연료개질기는 탄화수소 연료(LNG, 프로판, 납사, 석탄 가스 메탄올 등)를 수소가 함유된 가스(hydrogen

rich gas)로 변환하는 장치이다. 전력변환장치(inverter)는 연료전지에서 나오는 직류 전원을 교류 전원으로 변환시키는 장치이다. 공기공급 장치는 스택의 운전 압력에 따라 압축기나 블로어(blower)가 사용되며 불순물 제거를 위해 에어필터가 그리고, 가습을 위해서 가습기가 연계되어 설치된다. 연료와 냉각유체 매니폴드는 복수의 단위전지로 구성된 스택으로 연료와 냉각 유체를 균일하게 공급하고 배출시키기 위한 분배장치로 외부 매니폴드는 스택 외부에 그리고 내부 매니폴드의 경우 분리판과 일체형으로 구성된다. 냉각 유체는 필요에 따라 난방을 위하여 저장될 수 있으며 스택을 일정한 온도로 유지하기 위해 과도한 열은 냉각 장치를 통해 방출된다.

3. 기술개요 및 연료전지 고장 분석

3.1 고장 검출 및 진단 기술 개요

연료전지의 고장을 발견하고 처리하는 감시제어 기술의 체계는 Fig. 2와 같이 고장 검출에서 처리까

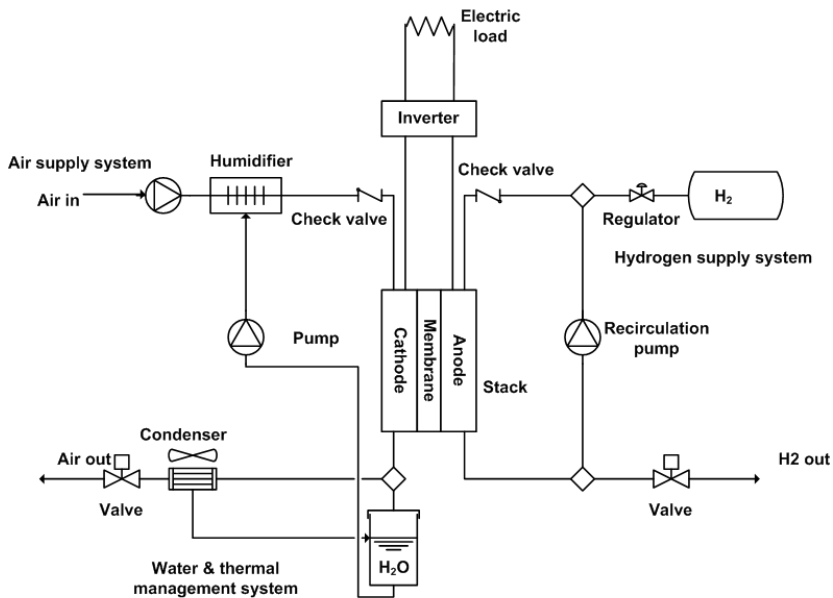


Fig. 1. Example of fuel cell system configuration

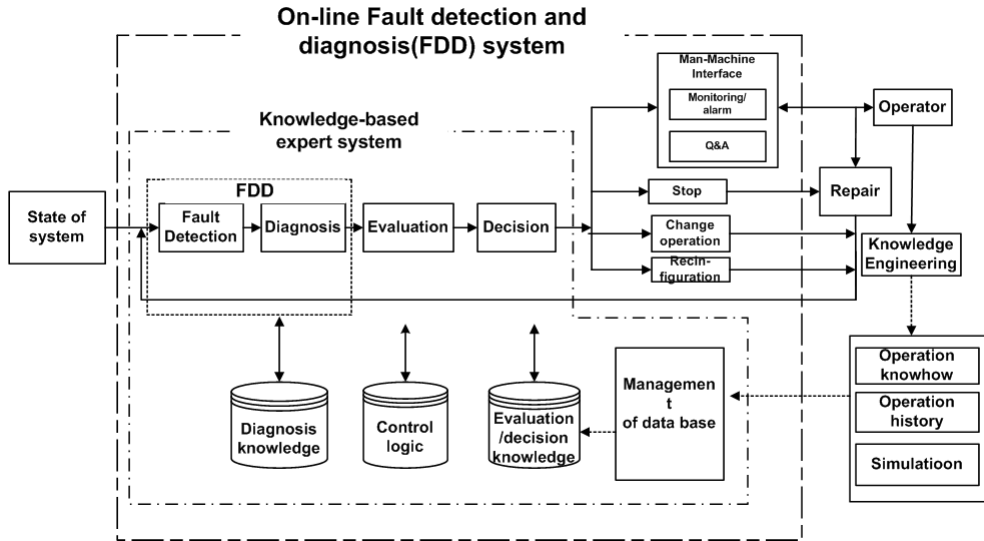


Fig. 2. Fault detection and processing step

지 4단계로 구분하여 나타낼 수 있다. 고장과 성능 저하는 첫 번째 두 단계인 고장 검출 및 진단 단계에서 규명할 수 있으며 고장의 심각성 분석을 통해 고장이 평가되면 운전 유지, 제어 변경, 정지 후 수리 등의 조치가 이루어진다^{6,8)}. 본 논문에서는 고장 검출 및 진단 기술을 위주로 기술을 분석하였다. 고장 검출 과정을 단순하게 표현하면 측정 가능한 변수나, 예측 가능한 변수가 미리 설정된 정상상태의 허용범위를 벗어나는 것을 검사하는 것이다. 만약 허용범위를 초과하면 고장 메시지를 출력하게 된다. 이와 같은 기능은 고장 검출을 위한 모니터링이라 한다. 필요할 경우 이 단계에 이어 원인이나 위치를 찾을 수 있는 진단 과정이 수행된다. 다음 단계가 고장 평가로 이것은 발생한 고장이 시스템이나 공정에 얼마나 큰 영향을 미칠 것인가를 평가하는 것이다. 고장의 정도가 파악되면, 다음 단계로 조치를 취해야 한다. 고장 평가 결과 허용할 만한 경우이면 운전은 당분간 정상적으로 계속될 수 있으며, 허용범위를 넘어선 경우에는 시스템을 즉시 정지시키고 고장 부위를 제거시켜야 한다^{6,8)}. Fig. 2는 고장 검출에서 처리를 위한 각 단계와 종합적인 감시제어 시스템 구성을 나타낸 예이다. 고장 검출 및 처리 과정이 피드백(feedback) 제어와

같은 방법으로 구성되는 것을 볼 수 있다. 그러나 피드백 제어와는 달리 시스템 상태에 따라 이를 해결하기 위한 시간 지연이 필요할 수 있다. 즉 운전 변환, 정지, 고장 제거 등은 많은 시간 지연이 필요한 프로세스이다. 고장의 검출과 진단 단계에서 관측된 상태값을 이용하여 설비의 정상/비정상 상태를 판단하고(고장 검출), 고장의 위치와 원인 그리고 발생 시점(고장 진단) 등을 분석하게 된다. 고장을 검출하기 위해서, 즉 관측된 상태가 정상인지 비정상인지를 파악하기 위해서는 실제 측정값과 비교할 수 있는 기준이 필요하다. 이들 기준은 다음과 같은 자료를 이용하여 정할 수 있다.

- 설계 개요, 기준, 표준(code, standards)
- 운전자 경험
- 제작사의 부품 제원, 즉 연료전지 시스템과 스택, 부속 운전장치의 정격값
- I-V 곡선과 같은 비교 가능한 연료전지의 특성 곡선
- 현장 실험 및 해석 결과(정상 및 고장 자료 포함)

3.2 연료전지 고장 분석

연료전지 시스템은 스택과 주변 운전장치(BOP)

로 크게 구분할 수 있다. 연료전지를 정상적으로 운전하기 위해서는 스택은 물론 BOP를 구성하는 위한 밸브, 유체기기, 센서 등 다양한 부품들이 장단기적으로 이상이 없는 안정된 상태로 유지 관리되어야 한다. 연료전지 스택은 동일한 매니폴드에서 연료와 냉각유체가 공급되고 배출되도록 단위전지가 적층되어 있어서 하나의 단위전지 문제가 전체로 파급될 수 있는 구조이다. 또한 연료공급과 냉각을 위한 BOP와 전력변환기 등이 스택에 직렬로 연계되어 있어서 BOP의 문제가 스택에 직접 영향을 미치게 된다. 따라서 연료전지 본체의 신뢰성과 내구성을 유지하기 위해서는 단위전지 구성요소를 포함한 스택 내부의 결함은 물론 운전장치의 문제가 스택 전체의 손상에 미치는 영향을 미연에 방지할 수 있는 고장 검출과 처리 기술이 필요하다.

연료전지에는 다양한 고장이 일어날 수 있으며 Fig. 3과 같이 고장을 분석하기 위해 인과관계를 트리 구조로 나타낼 수 있다^{8,12}). 고장트리는 연료전지에서 발생할 수 있는 다양한 고장을 규명할 수 있는 중요한 방식이다. 고장은 시스템을 구성하는 부위와 구성품으로 구분하여 다단계로 분류할 수 있다. 부위로는 스택, 연료공급설비, 공기공

급설비, 열 및 물관리설비 그리고 전력변환기로 구분할 수 있다. 스택은 경우 단위전지, 매니폴드 그리고 기밀유지 및 체결장치로 구분할 수 있으며, 단위전지는 다시 전극, 전해질, 기체확산층 그리고 분리판으로 구분하여 계층별로 고장과 원인을 분류할 수 있다.

Fig. 3은 자동차용 연료전지시스템의 고장을 공기공급설비, 연료공급설비 그리고 스택으로 나누어 정리한 것이다^{9,11}). 시스템 전체를 다룬 Frank⁸)과 Yang 등⁹)의 고장 트리는 부위별로 고장을 찾기 위한 것으로 고장 부위와 원인을 규명하는 과정을 트리를 통해 단계별로 구성하였다. 고장 위치와 원인을 나타내는 단계를 위치와 원인 그리고 현상으로 구분하여 재정리할 필요가 있다. 스택은 서로 다른 물질과 구조인 전극, 전해질, 기체확산층, 분리판으로 구성되며 기계적 요인과 화학적 요인에 의해 다양한 손상과 열화 현상이 발생할 수 있다¹²⁻¹⁴). Fig. 4가 그중에서 전해질의 고장을 분류한 고장 트리의 예이다¹²). 기계적 열화 현상 중에서 온도에 의한 것은 별도로 구분하였다.

특히, 고분자전해질연료전지의 경우 수분량이 전해질막과 전극의 성능에 영향을 미치는 주요 변수이기 때문에 수분과다, 건조 등 수분조건에

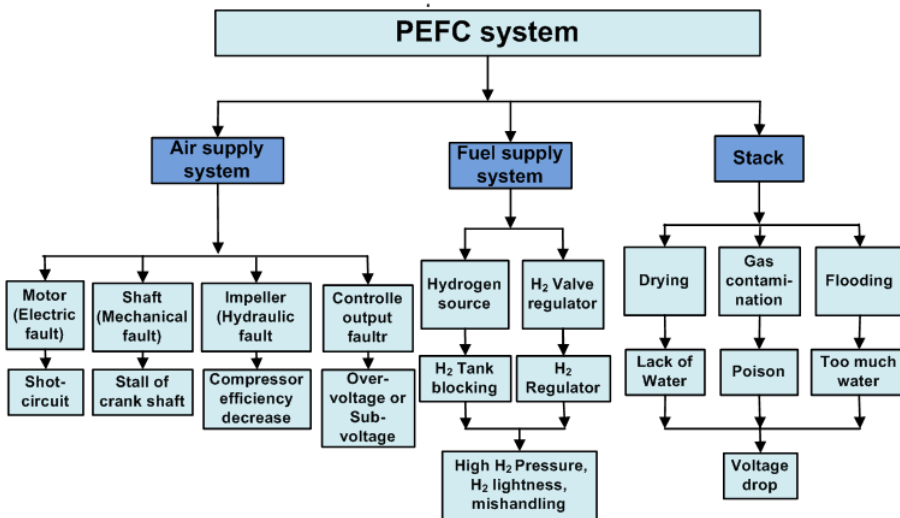


Fig. 3. Fault tree of fuel cell system

따른 다양한 연구가 진행되었다. Whiteley 등¹³⁾은 수분과다가 기체확산층, 유동채널, 촉매 등에 미치는 영향과 문제 해결 방안을 시스템, MEA, 구성 재료 측면에서 분석하여 정리하였다.

전극내에 과다한 수분의 축적은 기체의 확산을 방해할 수 있으며, 수분이 부족하면 전해질 막이 탈수되어 이온 전달이 적절하게 이루어질 수가 없게 된다²⁾. 고분자전해질연료전지는 물의 증발 온도인 100°C 이하에서 작동하기 때문에 스택 내부에서 생성된 물이 수증기가 아닌 액체상태로 존재하며 수분이 제대로 배출되지 않을 경우 반응 가스 공급을 위한 기공을 막아서 성능을 저하시키게 된다. 또한 대표적인 전해질인 나피온막은 이온전도를 위해 수분이 필요하며 수분이 부족할 경우 성능 저하와 더불어 수명저하를 초래할 수 있다. 연료전지 내부의 상대 습도는 반응에 의해 부하에 비례하여 생성되는 물의 양과 가습을 위해 공급된 수분량 그리고 스택의 온도와 공급 가스의 양에 의해 결정되는 것으로 연료전지 부하와 온도에 맞는 적절한 공기량과 가습이 필요하다²⁾. 수분과다는 높은 전류 밀도조건에서 물 생성량이 배출되는 물의 양보다 더 클 경우와 낮은 전류 밀도에서도 작동온도가 낮을 경우 발생할 가능성이 높으며 반대로 높은 작동 온도는 물의 증발을 촉진시켜 전해질 막을 건조

시킬 수가 있다. 가습기의 기능 장애는 공급 가스의 상대 습도를 저하시켜 건조 상태를 초래할 수 있다. 스택의 또 다른 고장은 공급 가스의 오염에 의한 것으로 특히 연료 개질기 또는 오염된 환경에서 작동하는 스택의 경우 불순물로 인해 연료전지 촉매의 피독과 전해질막의 이온 교환 능력저하로 인해 전체적인 성능저하를 초래할 수 있다¹³⁾.

수소공급장치는 안정성 측면에서 매우 중요하며, 수소는 가장 가벼운 분자이며 가연성이 높기 때문에 압력 상승과 이에 따른 가스 누설 등에 대한 대비가 있어야 한다. 수소가스 공급장치의 고장에 대해서는 수소 탱크와 조절밸브에서의 연료 막힘과 누설 문제로 단순화시켜 고장 트리를 정리하였다. 밸브가 파손되면 가스 누출로 인하여 위험한 상황이 발생할 수 있다. 공기공급장치의 기능은 연료전지 부하에 비례하여 필요한 공기를 적절한 전력으로 공급하는 것으로서, 고장은 적합한 효율로 공기를 공급하지 못하는 상태이다. Yang 등⁹⁾은 전동기와, 회전익, 제어기 그리고 회전축의 고장을 전기, 기계, 제어기 그리고 유체역학적 문제로 구분하여 인과관계를 분석하였다. 실제 공기공급장치나 연료공급장치의 상태를 파악하기 위해서는 공기 압력, 유량 그리고 온도센서 등이 압축기 입출구부에 설치될 수 있으며 이들 신호에 의해 고장을

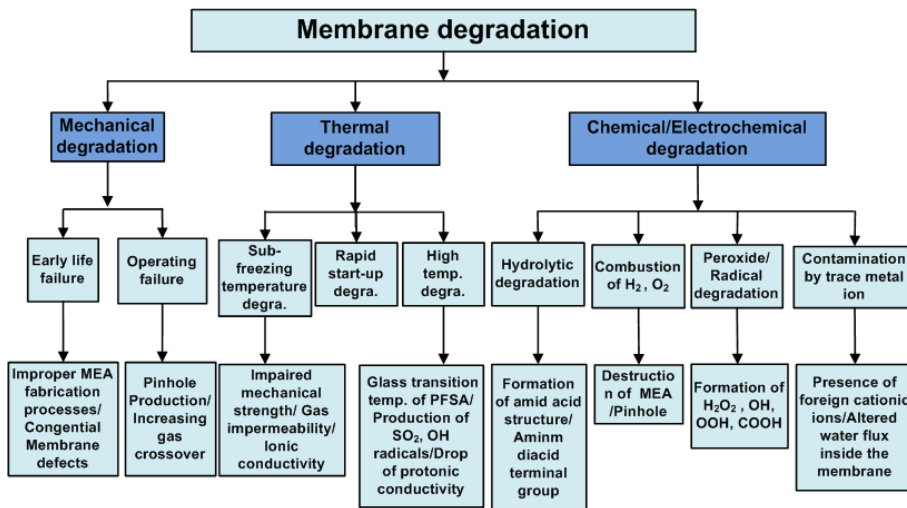


Fig. 4. Fault tree of electrolyte membrane

검출할 수 있으며, 최적의 센서의 위치와 개수 그리고 센서 고장에 대한 연구도 앞으로 필요하다.

Placca와 Kouta¹²⁾는 연료전지의 장기적 신뢰성 확립을 위해 분석이 필요한 열화 메커니즘의 인과 관계를 규명하기 위해 고장 트리 사용을 제안하였다. 방대한 문헌 조사를 통해 분리판을 제외한 전해질막, 전극촉매층 그리고 기체확산층에 대한 열화 원인과 열화율을 정리하였다. 전해질을 위해서 22개, 수소 전극 10개, 산소 전극 9개 그리고 가스 확산층을 위해 수소측 6개, 공기측 7개의 사안으로 열화 원인을 정리하였으며 고장 트리에 적용하였다. Fig. 4가 전해질 막에 대한 고장을 정리한 것이다. Whiteley 등¹³⁾은 Placca의 결과를 확장하여 스택을 전극, 전해질, 가스확산층, 분리판으로 구분하여 각각의 요소에서 발생할 수 있는 열화 원인을 Table 1과 같이 정리하였으며 고장 트리를 구성하였다. 스택 요소의 고장 원인에 대해 전해질막 11개, 전극촉매 8개, 기체확산층 3개 그리고 분리판 2개로 분리하였다. Whiteley의 목적은 연료 전지 고장 트리와 더불어 고장 모드 및 영향 분석 (failure mode and effect analysis, FMEA) 방법을 통해 연료전지 고장에 대한 이해도를 높이기 위한 것이다. 이를 통해 개발자와 제작자에게 신뢰성 향상을 위한 개선 분야를 규명시키기 위한 것으로 고장 검출과 진단 방법을 제시한 것은 아니다. 고장 트리를 통해 스택 요소의 열화가 스택 전체 열화에 미치는 영향을 확률 분포 함수와 Weibull 분포 함수를 이용하여 정량화시켰다. Table 1의 고장 현상 들은 각 부품에 영향을 미치는 원인들을 정리한 것으로 고장 검출과 진단 프로그램을 통해서 처리할 수 있는 것은 일부로서 현재까지 연구된 기술에 의해서는 제조시 품질관리를 통해 전해질막의 핀홀, 스크래치 그리고 접합 현상의 실시간 진단이 가능하며, 운전조건으로 수분과다, 건조 현상 등을 검출 진단할 수 있다. 나머지 현상은 단위전지 수준에서 진단되고 있으며, off-line으로 좀 더 상세한 원인을 파악할 수 있다.

이외에도 각 고장의 발생부위 및 원인과 증상

Table 1. Abnormal state that can occur in a stack element

Elements	Events
Membrane	Flooding
	Ice formation
	Incorrect BIP torque
	Creep
	Fatigue from relative humidity and temperature cycling
	Oxide film formation
	Dissolution of metal ions
	Contamination form humidifier/air pipe/gas impurity
	OH or OOH radical attack
	Excess Heat previous formed pinholes
Catalyst	Pt agglomeration/dissolution
	Pt migration
	Dissolution of metal ions
	Contamination form humidifier/air pipe/gas impurity
	Ice Formation
	Flooding
	Creep Exothermic Combustion due to previously formed pinholes
Gas diffusion layer	OH or OOH Radical attack
	Flooding
	Ice Formation
Metal bipolar plate	Oxide Film Formation
	Corrosion leading to release of multivalent cations

의 관계를 이해하기 위해 고장 트리가 정리되었다. Brik 등¹⁵⁾은 고장 트리에 기반한 PEFC의 열화에 대한 연구를 수행하였다. 정교한 고장 트리는 연료전지 열화를 초래하는 다양한 원인의 조합을 찾을 수 있는 연역적 분석 도구를 제공할 수 있다. 고장 트리를 통해 시스템 수준에서 스택의 전극 전해질 수준까지 고장의 원인을 분류하였다. 고장 트리를 위해 시스템 열화는 연료전지 스택과 운전장치로 구분하였다. 스택은 다시 전해질과 전극으로 구분하였으며 운전장치는 수소공급설비, 공기공급설비, 냉각설비로 구분하였다. 수소공급설비의 경우 개질기 이상 및 가습기 이상으로, 공기공급설비의 경우 가습기와 압축기로 그리고 냉각장치는 열교환기로 구분하였으며 공통적으로 센서가 포함된 제어시스템의 고장을 포함시켰다. 전

해질의 경우 기계적 손상과 전도도 감소, 오염, 두께 감소로 구분하였으며 원인으로 과도한 압축, 온도, 습도 조건, 불순물, 과산화 수소 형성 등을 고려하였다. 연료전지의 노후화 정도를 진단하기 위해 초기 상태와 사용 중인 연료전지의 운전상태를 정성적, 정량적으로 비교하였다. 전극과 전해질의 열화 정도를 알기 위해 연료전지 전류-전압(I-V)식에서 식 (1)의 저항손실과 활성화손실항의 계수인 저항계수 γ 와 전하이동상수 α 값의 변화를 실험적으로 결정하였다. 전해질막의 경우 저항계수 그리고 촉매열화의 경우 α 값의 변화로 성능 저하를 진단할 수 있었다. 이방식은 뒤에 설명할 그레이박스 모델식의 계수 변화를 이용하는 고장 검출법이다.

$$\Delta V = \frac{RT}{2\alpha F} \ln\left(\frac{i}{i_0}\right) + ri + \frac{RT}{2F} \ln\left(1 - \frac{i}{i_L}\right) \quad (1)$$

Benmouna 등¹⁰⁾은 문헌에서 추출한 데이터에 기초하여, Fig. 5와 같이 가장 일반적인 스택 내부 이상상태의 비율을 분류하였다¹⁰⁾. 수분관리와 관련된 수분과다 및 건조는 각각 33% 및 19%로 반 이상을 차지하고 있으며 다음으로 내구성과 누설 관련 고장이 12%, 9%이며 이외에 CO 피독, 막 열화와 같은 상태가 기타 결함으로 27%를 차지한다.

Collong과 Kouta¹⁶⁾는 PEFC의 안전에 가장 중요

한 부위인 수소 공급 시스템의 신뢰성 분석을 위한 폭발 관련 고장 트리를 구성하였다. 전문 데이터베이스에서 가져온 자료를 고장 모델식에 반영하였다. 실질적인 자료를 통해 스택열화에 의한 가스 누설을 $7.34 \times 10^{-6}/h$, 압력 조절밸브 고장률 $7.55 \times 10^{-6}/h$ 등 19개의 기본 사안에 대한 고장률(failure rate)을 최대, 최소, 평균값을 정리하였으며 이를 이용하여 고장 확률을 사용시간과 관련된 통계적 모델식으로 정량화시킬 수 있었다. 고장 트리와 모델식을 통해 시스템의 폭발 확률이 평가되고 치명적인 고장 시퀀스가 식별될 수 있다. 고장 트리는 수소 시스템에서 벌어질 수 있는 폭발의 원인과 부위를 분류한 것으로 폭발은 수소 탱크의 기계적 손상에 의한 것과 누설에 의한 것으로 구분하여 파괴의 원인은 탱크벽면의 노후화나 외부 충격에 의한 기계적 손상, 탱크의 압력 상승을 초래하는 탱크 주변 화재 그리고 안전밸브의 고장으로 분류하였다. 누설은 공급 배관, 스택 그리고 수소 배출 안전 밸브의 고장으로 구분하였으며 스택의 경우 압력밸브나 압력센서 손상에 의한 스택의 과압 상태, 기밀재의 노후와 그리고 온도 상승을 초래하는 냉각 시스템 고장을 원인으로 분류하였다. Collong과 Kouta¹⁶⁾의 방법을 통해 PEFC 내부 화재로 인한 폭발 확률, 제어되지 않는 수소 누설에 의한 폭발 확률 등을 추정할 수 있으며 이를 방지하기 위한 설계 가이드라인

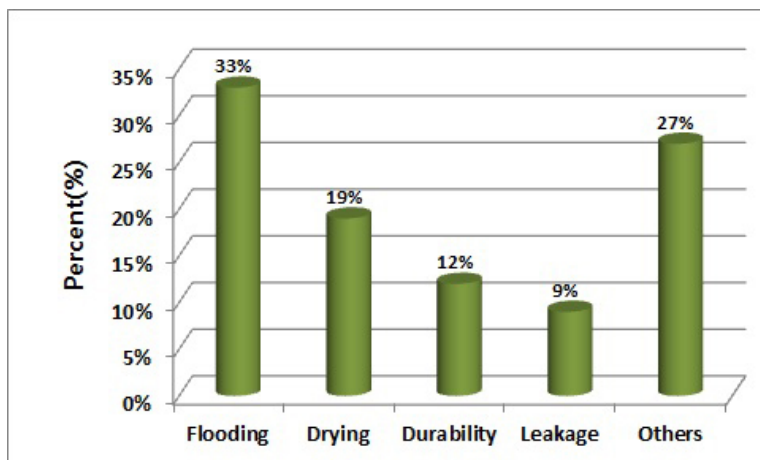


Fig. 5. Failure rate of fuel cell stack

을 제시할 수 있다.

4. 고장 검출 및 진단 기술

고장 검출 및 진단 방법은 전처리(Preprocessing)와 분류(Classification)의 두 단계로 구분될 수 있다. 전처리 과정은 센서의 측정값을 이용하여 분류과정에 효과적으로 이용될 수 있는 특성값을 추출하거나 생성하는 과정이다. 이 과정에 모델식이 사용될 경우 모델식 기반 방식이 된다. 신호검사나 신호 변환 및 해석은 고장 특성을 추출하기 위한 방법의 하나이다. 분류는 전처리에서 처리된 자료를 이용하여 전문가시스템이나 패턴인식 방법 등으로 시스템이나 부품의 고장원인과 위치 등을 구분하는 과정이다. Fig. 6은 전처리를 포함하여 고장검출 방법을 정리한 것이다.

4.1 전처리 과정

전처리 과정은 고장 검출 및 진단에 필요한 변수를 선택하고 특성화시키는 과정으로 적절한 전처리에 의해 분류과정을 단순화시킬 수 있으며, 분류의 정확도를 높일 수 있다. 전처리기법으로는 측정된 신호의 변환, 특성값(characteristic quantities)

도출, 모델식(model)을 이용하는 방법이 있다. 모델식 방식은 이론적 중복값(analytical redundancy)을 구하고 이 값과 실제 측정값과의 차이인 잔차(residual)를 이용하는 것이다. 단순 변환은 단위 변환이나 정규화 그리고 시간에 따른 변화량을 이용한 경향 생성 등이 있다. 특성값은 시스템이나 부품의 성능 특성을 나타내는 값으로 측정된 값을 이용하여 산출할 수 있는 열효율, 열전달률, 연료비 등이 있다. 신호 처리 방법으로는 푸리에 변환(fast fourier transform, FFT)과 Short-Time Fourier Transform (STFT) 및 Wavelet 변환(wavelet transform, WT), 전기화학 임피던스 분석법(electrochemical impedance spectroscopy, EIS) 등이 있다.

모델기반 전처리 과정은 Fig. 7과 같이 고장 분류를 위한 잔차를 생성하기 위해 정량적이거나 정성적인 모델식을 이용하는 것이다. 적합하게 유도된 모델은 잔차나 물리적인 의미가 있는 계수의 예측에 효과적으로 사용할 수 있으므로 고장 검출 및 진단을 위해 매우 유용하다. 모델에는 관측(current)모델, 공칭(nominal)모델 그리고 고장(fault)모델이 있다⁷⁻⁸⁾. 관측모델은 현재의 시스템의 성능을 예측하기 위한 모델이며, 공칭모델은 주어진 입력상태에서 정상적인 시스템의 출력을 예측하는 모델이다. 고장모델은 주어진 입력상태

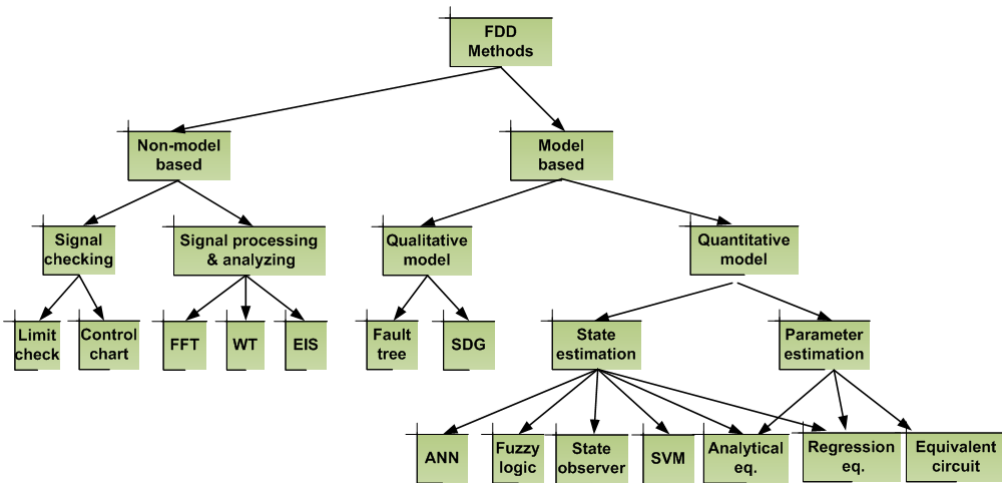


Fig. 6. Classification of fault detection and diagnosis methods

에서 특정 고장을 예측하기 위한 모델이다. 고장 모델을 이용할 경우 고장의 검출은 물론 진단도 가능하나, 이를 위해서는 다수의 고장모델이 필요하다. 잔차(residual)와 계수변화는 모델 기반 전처리 과정에서 생성될 수 있는 특성값이다. 상태나 출력값 잔차는 실제 측정값과 공칭모델의 결과나 고장 모델의 결과를 비교하여 구할 수 있다. 계수 변화는 정형화된 공칭모델의 계수를 예측하여 정상상태의 공칭모델 계수값과의 차이를 구하는 것이며, 고장모델을 사용할 경우 다수의 고장모델 계수와의 차이를 구하는 것이다^{6-8,17-20}.

대수학이나 미분방정식으로 유도된 물리적 다차원 모델은 "화이트박스(white-box)" 모델이라고 하며 실험자료에 기반한 것을 "블랙박스(black-box)" 모델이라고 한다. 간단한 시스템의 경우 해석적 모델을 사용할 수 있으며, 이 경우 모델식에 나타나는 계수는 물리적인 의미를 가지고 있으므로 고장 진단에 유용하게 사용될 수 있다. 반면에 블랙박스 모델은 시스템이 복잡하여 이론적인 식을 유도하기 어려운 경우에 통계적 회귀식과 같이 실험자료를 이용하여 예측식을 유도하는 것으로, 이 경우 모델식의 계수는 물리적으로 의미가 없다. 이론식과 실험자료에 의존하는 두가지 방식을 절충하여 물리적 현상에 기반한 이론식의 계수 등을 실험적으로 정하는 "그레이박스(grey-box)" 모델식도 semi-empirical 모델식으로 사용될 수 있다²⁰. Fig. 7과 같이 고장 검출이나 진단에 사용하는 공칭모델, 관측모델 그리고 고장모델을 화이트박스, 그레이박스 그리고 블랙박스로 유도할 수 있다.

비모델 기법

- 신호검사기법: 시간 변화분 산출, 단위 변환, 정규화, 평균값 산출
- 프로세스 관리도 기법: Shewhart 차트, 누적합관리도, exponentially weighted moving average (EWMA) 관리도
- 신호해석 기법: FFT, WT, EIS

모델 기법:

- 잔차 발생에 따른 분류: 상태 추정기법, 계수 추정기법, 등가방정식 접근법
- 모델 구조에 따른 분류: 화이트박스 모델(해석적 모델), 블랙박스 모델, 그레이박스 모델, 정성적 모델

4.2 분류 과정

고장 검출과 진단의 두 번째 단계는 분류이다. 분류는 전처리된 자료를 이용하여 정상상태 여부를 판단하고 정상이 아닌 경우 고장의 원인과 위치를 규명하는 과정이다. 광의의 개념으로, 분류기는 전문가 시스템(expert system)으로 볼 수 있다. 전문가 시스템은 특정분야에 있어서 인간의 전문지식에 의한 추론 과정(reasoning process)을 컴퓨터 등의 기계를 이용해 실현시키는 것으로 지식 기반(knowledge base)과 추론 엔진(inference engine)으로 구성된다^{8,18,21,22}. 지식기반에는 전문적인 지식이 포함되어야 하며, 추론엔진은 문제 해결을 위해 주어진 데이터와 전문 지식을 연결시키는 기능을 수

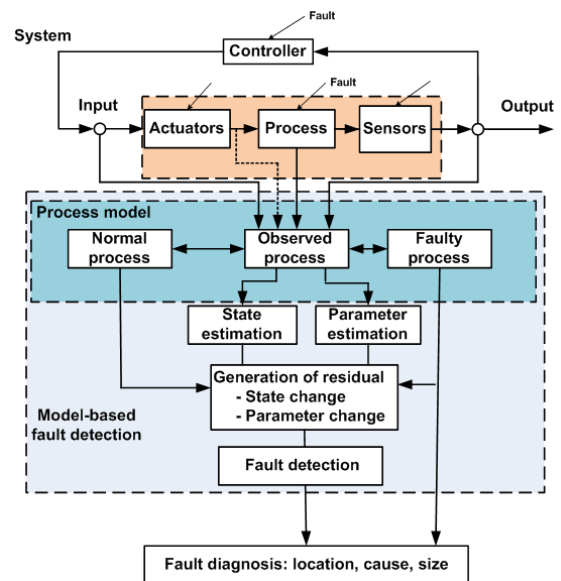


Fig. 7. Model-based fault detection and diagnosis method

행한다. 추론 및 분류 방법으로는 간단하게는 조건 (if-then) 규칙이 사용될 수 있으며, 복잡한 시스템의 경우 퍼지 논리(fuzzy logic, FL), 퍼지 군집화(fuzzy clustering), 신경망(artificial neural network, ANN) 등이 사용될 수 있다. ANN, FL로 구분되는 인공 지능은 모델기반 방법에서의 블랙박스 모델식의 역할과는 다른 패턴 인식기로서 고장 분류에 이용된다. 주성분 분석(principle component analysis, PCA) 및 fisher discriminant analysis (FDA)와 같은 선형방식과 kernel PCA (KPCA) 및 kernel FDA (KFDA)와 같은 비선형 분석 방법은 통계 방법의 일부이며 베이지안 네트워크(BN)도 통계 이론에 기반하고 있는 분류법이다^{18,23-28}. 이들 방법에는 각각 장단점이 있기 때문에 통합적인 고장 검출과 진단을 위해서는 이들의 방법을 결합한 하이브리드 접근법이 유망하게 사용될 수 있을 것이다. Li 등²³은 연료전지에 고장 특성 도출을 위해 PCA, FDA와 같은 선형방식과 KPCA, KFDA와 같은 비선형 알고리즘을 사용하였으며 분류를 위해서는 계수 분리 방법인 gaussian mixture model (GMM), K-nearest neighbor (KNN), support vector machine (SVM) 알고리즘을 적용 비교하였다. Lee⁹와 House 등²⁴은 공조시스템을 위해 ANN, crisp-nearest prototype (CNP), crisp K-nearest neighbor (CKNN), fuzzy K-nearest neighbor (FKNN), rule 기반, 통계적 Bayes 방법 등 6가지 방법을 고장에 적용하여 비교 분석하였다. Li 등²⁵은 SVM 방식을 이용하여 스택의 고압, 저압, 낮은 공기비 그리고 건조 조건에 대한 상태를 분류할 수 있었다. Escobet 등²⁶은 고장 검출을 위한 퍼지 모델식을 사용하였으며, 5개의 고장을 분류하기 위하여 KNN 패턴 인식 방법을 기반으로 하는 퍼지 추론 엔진을 사용하였다.

Table 2가 연료전지에 적용된 고장 분류방식에 대한 논문을 정리한 것이다. 대표적인 분류법의 예로서 최근접 이웃(K-NN)에 퍼지이론을 연계시킨 퍼지 K-NN의 알고리즘을 설명하면 다음과 같다. K-NN 결정 규칙은 벡터의 최근접 자료로 표시되는 분류에 의해 입력 패턴을 간단한 과정에 의해

분류하게 된다. 계산이 간단하고 작은 수의 샘플을 이용하여 매우 좋은 결과들을 얻을 수 있는 장점이 있다. 퍼지 집합이론과 K-NN 방법을 접합시킨 퍼지 K-NN 알고리즘을 K-NN 분류기준 사용 전에 분류된 샘플 자료를 위한 전처리가 필요없다. 퍼지 K-NN 알고리즘은 샘플 벡터에 특정 군집을 지정하는 것 이외에 속하는 정도를 나타내는 소속함수를 포함시키는 것이 K-NN과 구별된다. 알고리즘의 기본은 샘플 자료의 소속함수와 샘플 자료까지의 거리를 이용하여 군집에 속하는 정도인 소속함수를 계산하는 것이다. 퍼지 K-NN 알고리즘은 K번째까지의 분류된 최근접 샘플 집합을 찾아야 한다는 점에서 K-NN 알고리즘과 유사하다. $W = \{x_1, x_2, \dots, x_n\}$ 를 n 샘플의 집합으로 하고 $u_i(x)$ 를 벡터 x의 소속함수로, u_{ij} 를 i번째 벡터의 소속함수로 설정하면 소속함수 $u_i(x)$ 는 다음 식으로 계산된다.

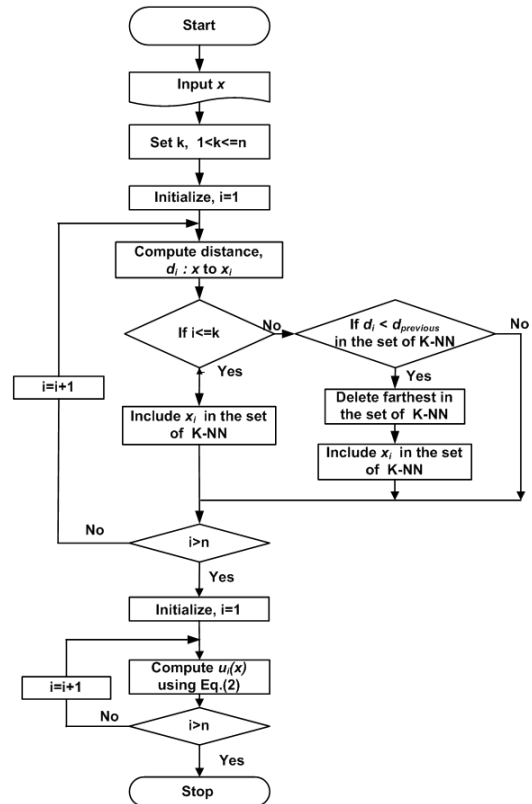


Fig. 8. Fuzzy K-NN algorithm

Table 2. Failure classification methods

Methods	Variables	Faults	Major results	Reference
Feature extraction: PCA, FDA, KPCA, KFDA Classification: GMM, K-NN, SVM	· Cell voltage	· Flooding · Drying	Various feature extraction and classification methodologies were employed on a 20-cell PEMFC stack using the individual cell voltages. For feature extraction methods (PCA, FDA, KPCA, KFDA) and three typical classification methodologies (GMM, K-NN, SVM) were employed. Considering the performances of diagnosis accuracy and feasibility of online implementation, FDA combined by SVM were chosen as final solution in the case.	Li et al. ²³⁾
Artificial neural network (ANN) ensemble	· Stack voltage · Stack Current · Stack Temp. · Air flow rate · Air Pressure · H2 Pressure	· Cooling system · Gas crossover · Air supply system · Fuel supply system	An ANN ensemble method is used for the fault diagnostics of the PEFC. The ANN ensemble method based on BP-ANN and the Lagrange multiplier method is designed. 4 sub-ANNs were used to classify the 4 fault patterns	Shao et al. ²⁷⁾
Fuzzy logic with EIS	Stack voltage	· water management	In order to discriminate different degree of flooding/drying in the stack, EIS is utilized as a basis tool and a double-fuzzy method consisting of fuzzy clustering and fuzzy logic was developed. Two features, i.e., occurring frequency of the maximal absolute phase value and polarization resistance, were proved to be valuable and beneficial for fault classification	Zheng et al. ²⁸⁾
SVM	Cell voltage	· Low pressure · High pressure · Low air stoichiometry · Drying	The SVM combined with designed diagnosis rule is used to achieve FDD with using individual cell voltages as the variables for diagnosis. After training the SVM model using 5 state data sets including normal state, the SVM model was used to estimate the state	Li et al. ²⁵⁾

$$u_i(x) = \frac{\sum_{j=1}^k u_{ij}(1/\|x-x_j\|^{2/m-1})}{\sum_{j=1}^k (1/\|x-x_j\|^{2/m-1})} \quad (2)$$

퍼지 K-NN 알고리즘은 Fig. 8과 같이 나타낼 수 있다.

식 (2)에서 알 수 있는 바와 같이 x 의 소속함수는 최근접 이웃 벡터까지의 거리에 반비례하며 벡터의 소속함수에 비례한다. 여기서는 변수 m 은 거리의 함수로 소속함수를 계산할 때 거리의 가중정도를 나타내는 값이다. 만약 m 값이 2이면 이웃 점들이 소속함수에 미치는 정도는 분류될 점으로부터의 거리에 반비례하게 된다. m 의 값이 증가할수록 가중정도가 증가되어 분류될 점으로부터의 거리에 의한 효과가 감소하게 된다.

4.3 비모델 기반 고장 검출 및 진단 방법

수학적 모델식을 사용하지 않는 고장 검출 및 진단기법으로는 신호검사기법^{6,29-30)}, 관리도(Control chart) 기법³¹⁻³⁴⁾ 그리고 신호해석 기법 등이 있다^{35,36)}. 신호검사기법은 가장 기본적인 방법으로 시스템의 출력신호만으로 고장 검출 및 진단을 수행하는 방법이다. 입력신호를 측정할 수 없는 환경이거나, 출력만이 관심인 경우에 주로 이용하게 되는데, 그 대표적인 경우가 일반적으로 가장 많이 사용하는 한계 검사(limit checking) 기법이다. 이 방법은 시스템의 측정 변수값을 미리 설정한 정상 운전의 한계값과 비교하여 이 값을 넘는 경우 그 변수의 기능이 비정상적임을 알리고 그 변수에 해당되는 기기의 고장을 지적하는 방법이다. 이외에 검

사기법은 단위시간당 증분을 이용한 경향검사 (trend check)와 평균치, 공분산, 상관관계 등의 통계적 특성 변화를 고장 검출 및 진단에 이용하는 것이다.

고장 검출에 가장 오래된 시스템의 성능 감시방법이 관리도 기법으로 현재에도 품질관리 분야에서 많이 사용되고 있다. 이 방법은 1924년 W. A. Shewhart에 제시되었다. 순차적으로 얻어지는 공정의 신호를 통계적인 관점에서 처리하는 것으로 경향 감시 분야에서 많이 적용되고 있다^{31,32,37-39}. 개념은 한계검사 기법과 유사하나 장시간에 걸쳐 지속적으로 자료를 관리한다는 점에서 차이가 있다. 허용오차로 표준편차의 3배를 이용하는 3 sigma (σ) 방법이 많이 채택되고 있다³⁹. 연료전지의 경우 스택을 구성하는 단위셀의 고장을 검출하는데 적용될 수 있으며, 특정 단위전지에서 수소가 누설된 경우 각 단위전지의 시간-전압곡선을 운전 중과 정지시에 비교 관찰함으로써 고장을 검출하였다^{35,36}. Damour 등⁴⁰의 경우 시간에 대한 전압의 감소 동향과 더불어 전압 신호가 불안정할 경우 표준편차도 고장 검출을 위해 사용하였다. 공정의 변화가 작은 경우는 관리도 대신 누적합(cumulative sum)을 사용하는 기법도 있다. 누적합 기법은 순차적으로 들어오는 자료와 평균값과의 차이를 누적하거나 최대값과 최소값을 누적하는 방법으로 이루어진다. 이 기법의 공정의 평균값이 변화하거나 변화를 초래할 수 있는 원인들을 조사할 수 있는 장점이 있다⁴¹. 대표적인 신호해석기법으로는 진동분석기법과 음향분석기법을 들 수 있으며 이들은 고전적인 시스템 감시기법으로 분류된다. 진동 및 음향 측정치는 그 자체로서 고장 검출 정보로 사용될 수 있지만, fast fourier transform (FFT)나 wavelet transform (WT)를 이용하여 주파수 해석을 수행함으로써 훨씬 더 많은 정보를 얻을 수 있으며 고장의 조기 검출은 물론, 고장 종류도 매우 단순히 식별될 수 있다. 이 기법은 공기 압축기나 냉각수 펌프 등의 이상검출과 식별에 매우 유용하며 연료전지의 경우 스택의 전압신호를 변환시켜 이상을 검출하는데도

사용하였다^{35,36,42}.

고장 검출을 위한 신호로는 연료전지의 공정 변수인 전압, 전류, 온도, 압력, 유량은 물론 자기 공명 영상, 음향 방출(acoustic emission), 자기장, 중성자 방사선 등이 이용될 수 있으며 이를 위한 실험 방법으로는 임피던스 분석법, 분극 곡선 해석, 공간 전류 밀도 분포, 압력 강하 및 기체 크로마토그래피 등이 사용될 수 있다. 이러한 접근법은 일차적으로 측정자료의 동향 분석과 신호 변환방식을 이용하여 상태를 파악하게 하는 것이므로 비모델 방식으로 고려될 수 있다⁴². Legros 등⁴¹은 전해질 막의 성능을 저하시키는 건조 조건을 검출하기 위해 EIS 방법과 음향방출 기술을 사용하였다. 두가지 방식 모두 건조 상태를 파악하는데 사용할 수 있음을 파악하였으며 음향의 경우 활성화 정도를 누적관리도로 표시하여 고장 상태를 파악할 수 있었다. Teranishi 등⁴³은 자기공명영상(MRI) 기술을 연료전지 전해질 막의 수분 상태를 분석하기 위해 사용하였다. 모델식의 정확도를 높이기 위하여 MRI 측정 결과를 사용하여 최적의 계수를 구하였으며 이를 통해 전해질 내의 수분상태와 수분 전달 계수를 구할 수 있었다. 연료전지 내부의 화학 현상을 파악하기 위해 EIS 방법이 광범위하게 사용되고 있다^{44,45}. 측정결과는 임피던스 스펙트럼이나 보드 다이어그램으로 해석되거나 등가회로를 구성하는데 이용한다^{45,46}. 등가회로는 모델기반 방식의 하나로 이용될 수 있다. 이외의 전기화학 분석 방법으로는 순환전압전류법(cyclic voltammetry, CV), 선형주사전위법(linear sweeping voltammetry, LSV) 등이 연료전지의 상태파악을 위해 사용될 수 있다⁴⁴. Table 3은 연료전지에 적용된 비모델 방식의 고장 검출 및 진단 방법을 정리한 것이다.

4.4 모델 기반 고장 검출 및 진단 방법

모델 기반 접근법은 정량적인 방식과 정성적인 방식으로 구분될 수 있다. 설계 및 자동제어를 위해 정량적 모델식이 유용하게 사용될 수 있다. 특

Table 3. Non-model-based fault detection and diagnosis methods

Methods	Variables	Faults	Major results	Reference
Signal checking (control chart)	. Cell voltage . Back pressure	. H ₂ leakage	The voltage- time curves and back pressure variation were analyzed to determine and localize the failed cell of a 5-cells short stack and 18-cells stack based on the data of the stack under hydrogen sudden stop condition when the stacks are operating in the open circuit voltage condition.	Khorasani et al. ³³⁾
	. cell voltage	. H ₂ leakage	The the voltage-time graph of the cells were monitored in different operating conditions with a 100 W three-cell stack and a 5 kW 42-cell stacks. The curve allowed the detection of the failed cells, which show abnormal performance and voltage pattern when compared to the other cells in the stack. A low cell voltage threshold defined at 200 mV.	Tian et al. ³⁴⁾
Signal checking (cumulative control chart)	. Acoustic Emission	.Drying	The acoustic emission (AE) technique was evaluated for the detection of membrane dehydration in PEFC during operation. EIS and AE measurements were carried out during dehydration of Nafion samples at 10% RH. The curve of the cumulated AE activity was shown to be sensitive enough to detect the drying stste.	Legros et al. ⁴¹⁾
Signal Processing: Wavelet Transform (WT)	. Stack voltage	. Water management	The WT was applied to localize the dysfunctions related to inappropriate humidity levels inside the cell. A comparison between the Discrete Wavelet Transform (DWT) and the Continuous Wavelet Transform (DWT) had shown that the DWT is more efficient in detecting and localizing faults in fuel cells.	Ibrahim et al. ³⁵⁾
	. Air pressure difference . Stack voltage . cell voltage	. Air stoichiometry	To detect and identify a high air stoichiometry fault, the wavelet transform (WT) and more precisely the energy contained in each detail of the wavelet decomposition was successfully used.	Pahon et al. ³⁶⁾
Signal processing: Empirical Model Decomposition (EMD)	Stack voltage	. Water management	Based on EMD, the voltage is decomposed in fourteen intrinsic mode functions (IMFs), and then the energy of each IMFs is computed to quantifying its contribution to the overall energy. The FDD of nominal, flooding and drying states are performed using only two specifics IMFs.	Damour et al. ⁴⁰⁾

히 설계된 시스템을 이론적으로 검증하고 최적화시키기 위해서는 복잡한 물리적 다차원 모델이 사용될 필요가 있다. 연료전지 해석을 위해서는 전기화학, 열역학, 열 및 물질 전달, 유체역학 등이 연계된 관계식이 필요하다. 연료전지와 같이 비선형성이 강한 복잡한 시스템의 정밀하게 해석하기 위해서는 계산시간이 장시간 소요될 수 있어 실시간 해석을 위해서는 완전한 해석적 방법보다는 실험기반 모델식이 유리할 수 있다²⁰⁾. Fig. 7과 같이 모델기반 방식은 모델식의 결과와 실제 측정값을 비교하여 고장을 검출하는 것이다⁷⁾. 차이를 이용하기 때문에 잔차(residula)방식이라고도 하며, 상

태를 예측하기 위한 계산을 추가로 수행하기 때문에 해석적 중복(analytical redundancy) 방법이라고도 한다. 모델식의 결과인 해석적 중복값과 측정값의 차이, 즉 잔차가 허용값을 초과하면 고장이 발생하였다고 간주한다. 잔차값의 크기나 패턴을 이용하여 분류와 추론 과정을 통해 고장을 진단하게 된다^{7,17-19)}. 모델식이 상태를 예측하는 방식과 달리 주어진 모델식의 계수를 예측하는 방식도 사용되고 있다. 공칭모델을 사용할 경우에는 예측된 계수의 값이 정상상태에서 예측한 값에서 벗어날 경우 고장으로 간주할 수 있으며 변화된 계수의 패턴을 이용하여 고장을 진단할 수 있다. 고장 모델식을

사용할 경우 각 고장 자료가 입력되어 예측된 계수값을 비교하여 가장 일치하는 계수에 해당하는 모델식을 통해 고장을 진단할 수 있다.

정량적 모델 접근법으로는 패리티 방정식(parity equation), 관측기(observer) 등가회로(equivalent circuit) 그리고 블랙박스 모델로서 ANN, 퍼지, 뉴로 퍼지(Neuro fuzzy) 방식이 사용될 수 있다^{20,21,26,45-54}. 모델 기반 방식은 모델식의 정확도가 보장되어야 하며 이를 위해 모델의 오차를 줄이기 위해 최소자승법 등 선형 및 비선형 시스템에 대한 몇 가지 방법이 제안되었다^{7,8,17,18}. 해석적 Parity 방정식을 이용한 방식은 가장 기본적인 모델 기반 방식으로 시스템에서 측정하는 신호를 예측하는 수학적 모델을 구하여 측정값과 모델로부터 구해진 값의 차이를 통해 고장 진단을 하는 것이다. 모델을 기반으로 하는 방법론 중에서 가장 간단한 방식이나 연료전지와 같이 시스템이 복잡한 경우 해당되는 측정 신호와 일치하는 완전한 수학적 모델을 찾기가 어려운 점이 있다. 따라서 이론식의 계수를 실험값을 통해 구하는 그레이박스 방식이 실제 연료전지를 예측하기 위해 일반적으로 사용된다. Fukuhara 등⁴⁷은 연료전지 수소극의 수분상태를 파악하기 위해 2가지 이론식을 유도하였다. 수분량을 계산하기 위한 선형식은 실험자료를 이용하여 물의 확산과 관련된 계수 등을 회귀식으로 구하였다. 수분과 수소량을 동시에 계산하기 위한 비선형식의 경우도 물배출과 관련된 계수를 실험자료를 이용하여 산출하였다. 마찬가지로 Escobet 등⁴⁸이 사용한 시스템 모델 중에서 스택 모델은 이론적인 I-V 곡선식의 계수를 실험자료를 이용하여 비선형 회귀방식으로 구하여 사용하였다. 관측기 방식은 모델 기반 진단을 위한 가장 일반적인 접근법 중의 하나이다. Tian 등⁴⁹은 시간과 수소압력을 입력으로 하는 단위전지 전압 예측을 위한 다중 회귀식의 12개 계수값을 이용하여 고장 상태의 셀을 검출하였다. 스택을 구성하는 단위전지의 전압을 전부 예측하였으며, 특정 단위전지에서 예측식 계수가 다른 전지와 차이가 발생할 경우 해당 전지

에 누설이 있는 것으로 진단하였다.

Fig. 9와 같은 Luenberger 구조의 linear parameter varying (LPV) 관측기가 잔차 계산에 적용되었다. 이 방법은 실제 시스템 입력값이 관측기의 입력으로 사용되며 관측기 출력과 실제 시스템 출력의 차이인 잔차를 이용하여 고장을 검출하게 된다. 실제 연료전지 시스템의 성능은 비선형 모델로 나타나며 이를 해석하기 위해서는 장시간이 소요되어 실시간으로 사용하기에 어려움이 있으므로 일반적으로 모델식을 선형화시켜 사용한다¹⁷. 시스템의 실제 공정모델은 다음과 같다.

$$\dot{x}(t) = Ax(t) + Bu(t) + Fv(t) + Lf_L(t) \quad (3)$$

$$y(t) = Cx(t) + Nn(t) + Mf_M(t) \quad (4)$$

여기서 $v(t)$ 와 $N(t)$ 는 교란신호이며, $f_L(t)$ 과 $f_M(t)$ 은 고장 신호이다. 상태 관측기의 모델식과 잔차는 다음과 같이 표시된다.

$$\dot{\hat{x}} = A\hat{x}(t) + Bu(t) + He(t) \quad (5)$$

$$e(t) = y(t) - C\hat{x}(t) \quad (6)$$

$$r(t) = We(t) \quad (7)$$

Lira 등⁵⁰이 PEFC 비선형 모델을 LPV 관측기로 선형화시켜 고장 진단에 적용하였다. Ballard NEXA[®] 시뮬레이터에 적용하여 5가지 고장을 진단하였다. (i) 시스템 공급 압력, (ii) 산소 소비, (iii) 스택 전압 및 (iv) 압축기 모터의 속도의 잔차를 이

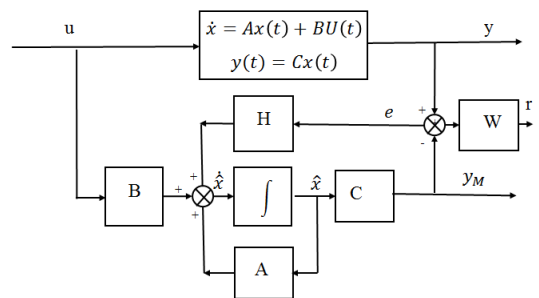


Fig. 9. State observer model based residual occurrence

용하여 잔차의 값이 미리 설정된 상하한 허용범위를 벗어날 경우 고장으로 간주하였다.

블랙박스 모델로 일반적으로 많이 사용하는 방식이 ANN으로 복잡한 연료전지의 성능 예측을 위하여 효과적으로 사용되고 있다^{51,52}. Kamal 등⁵³과 Steiner 등⁵⁴은 잔차를 계산하기 위한 모델식으로는 신경망을 사용하여, 각각 시스템 고장과 스택의 수분 과다와 건조상태를 검출하였다. 퍼지 예측식이 연료전지의 상태 예측을 위해 사용되었다^{26,55}. Escobet 등²⁶은 퍼지 이론을 이용하여 정상상태와 압축기 구동용 전동기의 마찰 증가, 전동기과열, 기체확산층과 유동채널에서의 수분증가로 인한 유동 저항 증가, 공기 공급 매니폴드에서의 누설 그리고 전동기 정지로 인한 전동기 전압 증가 등 5개의 고장 상태에 대한 패턴을 모델식으로 구성하여 고장을 검출하고 진단하였다.

등가회로는 연료전지 스택의 특성을 저항과 캐패시터로 이루어진 회로로 구성된 모델식으로 나타내는 방식이다. 모델식의 계수를 이루는 저항과 캐패시턴스의 변화나 모델식의 출력값과 실제 측정값의 차이인 잔차 변화를 이용하여 고장을 검출하게 된다^{46,56}.

최근에 연료전지 상태를 예측하기 위해 서포트 벡터 머신(support vector machine, SVM) 방식이 모델식으로 제안되었다⁵⁷⁻⁵⁹. SVM은 기계 학습 분야의 하나로 ANN과 마찬가지로 주로 패턴 분류와 상태 예측에 사용될 수 있다. 분류를 위해서는 주어진 데이터 집합을 바탕으로 SVM 알고리즘을 통해 비확률적 이진 선형 분류 모델을 만들어 분류시켜 놓고, 새로운 자료가 주어지면 어느 집합에 속할지 판단하게 된다. 또한 주어진 입출력 데이터를 이용하여 최소자승(least square) SVM (LS-SVM) 방식으로 블랙박스형의 모델식을 유도할 수 있다. 연료전지의 상태를 예측할 수 있는 모델식은 주로 성능 예측과 자동제어에 사용되고 있다⁵⁷⁻⁵⁹. SVM 모델은 고장 검출에 필요한 잔차를 생성하기 위한 공칭(nominal)모델이나 진단을 위한 고장(fault)모델을 학습시키는데도 사용할 수 있을 것이다. Zhong 등⁵⁷

은 radial base gaussian function (RBGF)을 커널(kernel) 함수로 하여 전류와 온도 신호를 입력으로 하여 실시간으로 전압을 예측하는 모델식을 제안하였으며 Li 등⁵⁸은 동일한 모델을 예측 제어에 적용하였다. Li 등⁵⁹은 정적 모델식을 통해 비선형 상태를 구하고 동특성은 선형식으로 예측할 수 있는 다중입력 다중출력(MIMO) Hammerstein 형태의 auto regressive exogenous (ARX) 모델식을 LS-SVM 방식으로 구하였다. 이 식은 스택의 온도와 공기측 압력 그리고 전압을 예측하는데 사용하였다. Li 등²⁵은 SVM 모델을 이용하여 4개의 연료전지 고장상태를 진단하였다. Fig. 10과 같이 실험자료를 이용하여 모델식을 학습시켰으며 측정된 값을 각각의 모델식에 입력시켜 패턴을 분류하였다. ANN과 같은 블랙박스 모델식의 적용 방법도 동일하다. 진단의 안정성을 높이기 위하여 일정한 범위(window) 내에서 미리 정해진 정도의 허용값을 초과하는 경우 고장으로 간주하였다. 지식기반 및 정성적 모델에 기반한 검출 및 진단 기법은 정량적 기법과 달리 대상 시스템에 대한 수학적 모델식 대신에 운전자의 경험규칙 또는 시스템의 정성적 거동을 기반으로 한다. 정성적 인과 관계 모델로 유향 그래프(signed direct graph, SDG) 방법^{58,59}과 앞에서 고장을 분석하기 위해 사용한 고장트리 방식이 포함된

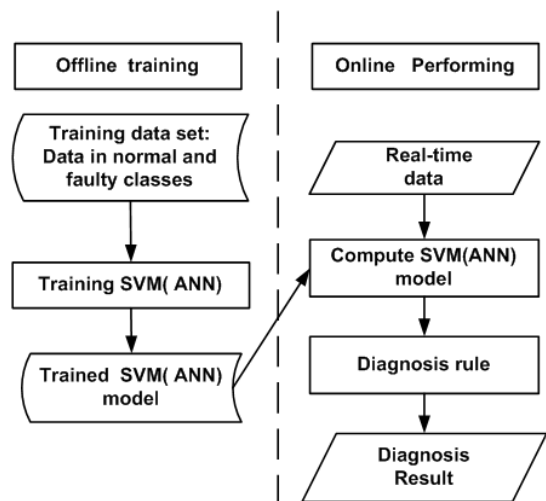


Fig. 10. SVM (ANN) model-based fault detection and diagnosis flowchart²⁵⁾

다^{11-13,16}. SDG는 프로세스 변수 간의 인과 관계를 나타내는 데 사용되는 그래프이다. 공정 변수는 절점으로 표시되며 두 변수 간의 원인 결과 관계는 해당 절점 사이의 방향 호(arc)로 표시된다. 시작 절점(node)이 원인이고 대상 절점이 효과이다. 실제 공정의 SDG는 이전의 운전자료나 수학적 모델식으로 구할 수 있다. 정상 값과 측정값의 잔차가 임계 값 경계 사이에 있을 때, 최대 임계값보다 크거나 최소값보다 작은 경우 각 노드에 세트 {0, +, -}의 부호가 각각 할당된다^{60,61}. 고장이 발생하였을 노드를 통해 고장이 전파되는 패턴을 분석해 고장을 추론할 수 있다. Chatti 등⁶¹은 고장에 의해 수소 압력, 스택전력 그리고 스택전압으로 구성된 3개의 잔차가 연속적으로 전파되는 정보가 포함된 SDG를 이용하여 스택내부의 수분상태를 포함하여 구

동기와 센서의 고장 등 10개의 고장을 진단하였다. 연료전지에 적용된 모델 방식의 대표적인 고장 검출 및 진단 방식에 대해서 Table 4에 정리하였다.

5. 결론

본 논문은 연료전지의 내구성과 신뢰성 향상에 필요한 고장 검출 및 진단 기술을 제시하기 위한 것이다. 그동안의 연구를 통해 고분자전해질 연료전지의 고장원인과 현상에 대해서는 고장 트리로 세밀하게 분석된 결과가 제시되었으나 검출 및 진단 기술은 개발 초기단계로 한정된 고장에 대해서 적용 검증된 상태이다.

연료전지에 적용된 고장 검출 및 진단 방식을 모델과 비모델 방식으로 구분하였다. 관측된 자료

Table 4. Model-based fault detection and diagnosis methods

Methods	Variables	Faults	Major results	Reference
Grey-box model (state estimation)	In: current, temperature Out: H ₂ supply rate	. Flooding	A model equation for the analysis of hydrogen supply and water content was derived and the constants of the analytical equation were determined using experimental data. Using the residuals, which are the difference between the model formula and the experimental results on the hydrogen supply, the water condition is diagnosed and is managed with purge.	Fukuhara et al. ⁴⁷⁾
Grey-box model	Out: motor current, motor RPM, O ₂ stoichiometry, stack voltage	. Compressor motor . Flooding . Manifold Air leak . Temperature controller	Fault detection and diagnostics are performed using four residuals related to motor current, motor speed, oxygen ratio, and stack voltage. As a model for estimating the steady state, I-V coefficient formula of the stack was obtained by nonlinear regression method using experimental data of fuel cell for automobile.	Escobet et al. ⁴⁸⁾
Regression eq. (parameter estimation)	In: H ₂ pressure, time Out: cell voltage	. Gas crossover . Anode/cooling compartment leak	Cells in a faulty are detected by using a 12-coefficient change of a multiple regression formula that predicts the voltage of a unit cell. When the voltage of the unit cells in the stack is predicted, it is regarded as a failure of the cell when it exceeds the allowable range by comparing with the predictive coefficient value of the other cell.	Tina et al. ⁴⁹⁾
State observer	In: stack current Out: compressor RPM stack voltage, O ₂ inlet pressure, O ₂ stoichiometry	. Compressor friction increase . Stack degradation . Hydrogen leakage (gasket) . Hydrogen leakage (Manifold) . Air leakage (Manifold)	The modelling of PEMFC system based on a parameter varying approach (LPV model), that considers model parameter variation is presented. This model is obtained using a Jacobian linearization of the PEMFC non-linear dynamic model. A set of common fault scenarios for a normal PEMFC operation is used.	Liar et al. ⁵⁰⁾

Table 4. Continued

Methods	Variables	Faults	Major results	Reference
Equivalent circuit (parameter estimation)	In: stack voltage Out: resistance, capacitance	. Hydrogen leakage, . Lowering of oxygen	Degree of hydrogen leakage and oxygen concentration decrease are diagnosed by using coefficients (resistance, capacitance) change of equivalent circuit to predict Nyquist plot.	Mousa et al. ⁴⁶⁾
	In: current Out: voltage	Prediction of degradation using equivalent circuit	A model of a PEFC are presented for a prognostics purpose and validated with experimental data. The parameters are successively updated using characterization measurements (polarisation curves and electrochemical impedance spectroscopy [EIS]). Degradation phenomena are diagnosed based on the results of the model compared to the ageing data.	Lechartier et al. ⁵⁶⁾
ANN (state estimation)	In: stack current compressor-motor current Out: net power, stack current, air (O ₂) stoichiometry	. Air leakage, . Sensor failure (power, voltage, oxygen) . Actuator failure	The radial basic function (RBF) network model using the difference of the measured value and the result of the steady state prediction formula is used to detect the faults. It is shown that all these faults with the amplitude of only $\pm 10\%$ of variable's nominal value can be clearly detected and isolated.	Kamal et al. ⁵³⁾
	In: current air flow rate, stack temp., dew point temp. Out: voltage, air pressure difference	. Air drying, . flooding	A diagnosis procedure of water management issues in fuel cell based on a black-box model based on recurrent neural networks.	Steiner et al. ⁵⁴⁾
Fuzzy (state estimation)	In: stack current, motor voltage Out: motor current, motor RPM, O ₂ stoichiometry stack voltage	. Compressor friction increase . Motor overheat . Water discharge resistance increase . Air leakage . Motor voltage increase	A fault diagnosis methodology termed visual block-fuzzy inductive reasoning is used. This simulator includes a set of five fault scenarios with the most frequent faults in fuel cell systems.	Escobet et al. ²⁶⁾
Qualitative model (signed directed graph)	In: Out: H ₂ pressure, stack power, stack voltage	. Drying of membrane . Air flooding . H ₂ valve controller . H ₂ mass flow sensor . H ₂ pressure sensor . H ₂ temperature sensor . Fuel cell current sensor . Fuel cell voltage sensor . Water temperature sensor . Water pressure sensor	Ten faults are correctly diagnosed by a signed directed graph (SDG) of the system that includes continuous paths that are difficult to distinguish by Matrix consisting of only three residuals.	Chatti et al. ⁶¹⁾

만을 이용하는 관리도 방식은 특정 자료의 경향이나 누적값을 이용하여 목표로 하는 단일 고장을 검출하는데 사용될 수 있다. 그러나 관리가 가

능한 몇 개의 도표만으로는 다양한 고장을 진단하기에는 어려움이 있다. 단위전지의 전압을 측정하여 고장 상태의 전지를 검출하는데 사용될

수 있을 것이다. 신호해석 방법은 신호 분리에 의해 동일한 측정값으로 복수개의 고장 상태를 구분할 수 있는 장점이 있으며, 스택 전압 신호만으로 건조와 수분과다 현상 등을 파악하는데 성공적으로 적용되었다. 모델방식은 모델식의 계수나 출력값으로 계산된 잔차의 패턴을 이용하여 다양한 고장을 진단할 수 있는 장점이 있다. 모델식의 입력으로 측정값이 필요하므로 자동제어와 상태 감시를 위한 측정센서가 많은 경우 효과적으로 적용될 수 있다. 연료전지의 상태를 예측하기 위해서는 완전한 이론식보다는 IV 곡선과 같은 특성식의 계수를 실험적으로 구한 그레이박스 모델이나 신경망, SVM 모델식과 같은 블랙박스 모델이 일반적으로 사용된다. 이론적인 화이트박스 모델은 학습을 위한 별도의 자료가 사용되지 않는 장점은 있으나 정확한 예측식의 유도과 계산시간의 문제로 실시간으로 적용하기가 어렵다. 그레이박스 모델인 위한 특성식은 정형화된 형태로 단일 운전조건에서는 유도가 단순하나 온도나 습도 등이 바뀌면 계수값이 달라질 수 있어 운전 조건의 함수로 계수를 구해야하는 복잡성이 있을 수 있다. 블랙박스 모델식은 복잡한 시스템에 대한 이해나 이론식 유도 없이 사용할 수 있는 방식이나 정상상태나 고장상태를 학습하기 위한 자료가 확보되어야 한다.

지금까지 연구된 연료전지의 고장 검출 및 진단 방식은 한정된 고장에 성공적으로 적용된 것으로 실제 시스템을 위해서는 고장 대상을 확대하는 것이 필요하다. 포괄적 고장 진단을 위해서는 각 부위나 부품 특성 맞게 개발된 방식을 통합시키는 것이 필요하다. 제어와 달리 정밀한 고장 진단을 위해서는 추가적으로 많은 수의 센서가 필요하게 되며, 경우에 따라서는 필요한 변수의 측정이 어려울 수도 있으므로 최적의 측정 변수와 측정 위치를 결정하는 것도 앞으로 해결해야 할 과제 중 하나이다.

후 기

본 연구는 한국에너지기술연구원의 주요사업 (B7-2451-13)을 재원으로 수행한 연구과제의 결과입니다.

References

1. Paris Agreement - Status of Ratification, http://unfccc.int/paris_agreement/items/9444.php.
2. J. Lamrminie and A. Dicks, "Fuel Cell System Explained", John Wiley, USA, 2003.
3. F. Barbir, "PEM fuel cells: theory and practice. Academic Press Series series editor", Elsevier Academic Press, Netherlands, 2005.
4. DOE, "The Department of Energy Fuel Cell Technology Office, Multi-Year Research, Development, and Demonstration Plan", 2016.
5. NEDO, "Road map of hydrogen and fuel cell 2010", http://www.nedo.go.jp/library/battery_hydrogen.html.
6. W. Y. Lee, "Computer-aided practical application of faults detection and diagnosis techniques in energy systems", Korea Institute of Energy Research Report, 1999, KIER-996816.
7. R. Isermann, "Process fault detection based on modeling and estimation methods—A survey", *Automatica*, Vol. 20, No. 4, 1984, pp. 387-404.
8. P. M. Frank, "Fault Diagnosis in Dynamic System Using Analytical and Knowledge-based Redundancy - A Survey and Some New Results", *Automatica*, Vol. 20, No. 3, 1990, pp. 459-474.
9. Q. Yang, A. Aitouche, and B.O. Bouamama, "Structural analysis for air supply system of fuel cell", *Int. Renew Energy Congr.*, 2009, pp. 5-7.
10. A. Benmouna, M. Becherif, D. Depernet, F. Gustin, H. S. Ramadan, and S. Fukuhara, "Fault diagnosis methods for Proton Exchange Membrane Fuel Cell system", *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 42, 2017, pp. 1534-1543.
11. Q. Yang, A. Aitouche, and B. O. Bouamama, "Structural Analysis for Fault Detection and Isolation in Fuel Cell Stack System, Sustainability in Energy and Buildings", *Sustainability in Energy and Buildings*, 2009, pp. 239-254.
12. L. Placca and Kouta R, "Fault tree analysis for PEM fuel cell degradation process modelling", *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 36, No. 12, 2011, pp. 393-405.
13. 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.
14. H. Li, Y. Tang, Z. Wang, Z. Shi, Z. Wu, D. Song, J. Zhang, K. Fatih, J. Zhang, H. Wang, Z. Liu, and R. Abouatallah, “A review of water flooding issues in the proton exchange membrane fuel cell”, *J. Power Sources*, Vol. 178, No. 1, 2008, pp. 103-117.
 15. K. Brik, F. Ben Ammar, A. Djerdir, and A. Miraoui, “Causal and fault trees analysis of proton exchange membrane fuel cell degradation”, *J. Fuel Cell Sci. Technol.*, Vol. 12, 2015, pp. 051002.
 16. S. Collong and R. Kouta, “Fault tree analysis of proton exchange membrane fuel cell system safety”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 41, 2015, pp. 8248-8260.
 17. R. Isermann, “Model-based fault-detection and diagnosis – status and applications”, *Annu. Rev. Control*, Vol. 29, 2005, pp. 71-85.
 18. R. Isermann, “Supervision, fault-detection and fault-diagnosis methods — An introduction”, *Control Eng. Pract.*, Vol. 5, No. 3, 1997, pp. 639-652.
 19. V. Venkatasubramanian, R. Rengaswamy, S. N. Kavuri, and K. Yin, “A review of process fault detection and diagnosis part I: quantitative model based methods”, *Comput. Chem. Eng.*, Vol. 27, 2003, pp. 293-311.
 20. R. Petrone, Z. Zheng, D. Hissel, M. C. Pera, C. Pianese, M. Sorrentino, M. Becherif, and N. Yousfi-Steiner, “A review on model-based diagnosis methodologies for PEMFCs”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 38, 2013, pp. 7077-7091.
 21. S. C. Marco and M. D. Mueller, “A Fault Diagnosis Toolbox Applying Classification and Inference Methods”, *IFAC Proceedings*, Vol. 42, No. 8, 2009, pp. 486-491.
 22. C. Nan, F. Khan, and M. T. Iqbal, “Real-time fault diagnosis using knowledge-based expert system”, *Process Saf. Environ. Prot.*, Vol. 86, 2008, pp. 55-71.
 23. Z. Li, R. Outbib, D. Hissel, and S. Giurgea, “Data-Driven diagnosis of PEM fuel cell: A comparative study”, *Control Eng. Pract.*, Vol. 28, 2014, pp. 1-12.
 24. J. M. House, W. Y. Lee, and D. R. Shin, “Classification techniques for Fault Detection and Diagnosis of an Ai-Handling Unit”, *ASHRAE Trans.* CH-99-18-5, 1999, pp. 1087-1097.
 25. Z. Li, R. Outbib, S. Giurgea, D. Hissel, S. Jemei, A. Giraud, and S. Rosini, “Online implementation of SVM based fault diagnosis strategy for PEMFC systems”, *Applied Energy*, Vol. 164, 2016, pp. 284-293.
 26. T. Escobet, A. Nebet, and F. Mugica, “PEM fuel cell fault diagnosis via a hybrid methodology based on fuzzy and pattern recognition techniques”, *Eng. Appl. Artif. Intell.*, Vol. 36, 2014, pp. 40-53.
 27. M. Shao, X. J. Zhu, H. F. Cao, and H. F. Shen, “An artificial neural network ensemble method for fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell system”, *Energy*, Vol. 67, 2014, pp. 268-275.
 28. Z. Zheng, M. C. Pera, D. Hissel, M. Becherif, K. S. Agbli and Y. Li, “A double-fuzzy diagnostic methodology dedicated to online fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell stacks”, *J. Power Sources*, Vol. 271, 2014, pp. 570-581.
 29. T. J. Rato and M. S. Reis, “On-line process monitoring using local measures of association: Part I — Detection performance”, *Chemometr. Intell. Lab.*, Vol. 142, No. 15, 2015, pp. 255-264.
 30. T. J. Rato and M. S. Reis, “On-line process monitoring using local measures of association: Part II — Design Issues and Fault diagnosis”, *Chemometr. Intell. Lab.*, Vol. 142, No. 15, 2015, pp. 255-264.
 31. K. C. Roes, R. J. Does, and Y. Schurink, “Shewhart-type control charts for individual observations”, *Journal of Quality Technology*, Vol. 25, No. 3, 1993, pp. 188-198.
 32. R. P. Leger, W. J. Garland, and W. S. Poehلمان, “Fault detection and diagnosis using statistical control charts and artificial neural networks”, *Artificial Intelligence in Engineering*, Vol. 12, No. 1, 1998, pp. 35-47.
 33. A. Khorasani, S. Asghari, A. Mokmeli, M. H. Shahsamand, and B. F. Imani, “A diagnosis method for identification of the defected cell(s) in the PEM fuel cells”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 35, 2010, pp. 9269-9275.
 34. G. Tian, S. Wasterlain, I. Endichi, D. Candusso, F. Harel, X. Francois, M. C. Pera, D. Hissel, and J. M. Kauffmann, “Diagnosis methods dedicated to the localization of failed cells within PEMFC stacks”, *J. Power Sources*, Vol. 182, 2008, pp. 449-461.
 35. M. Ibrahim, U. Antoni, N. Y. Steiner, S. Jemei, C. Kokonendji, B. Ludwig B, P. Moçotéguy, and D. Hissel, “Signal-based diagnostics by wavelet Transform for proton exchange membrane fuel cell”, *Energy Proced.*, Vol. 74, 2015, pp. 1508-1516.
 36. E. Pahon, N. Yousfi Steiner, S. Jemei, D. Hissel, P. Moçotéguy, “A signal-based method for fast PEMFC diagnosis”, *Appl. Energy*, Vol. 165, No. 7, 2016, pp. 748-758.
 37. N. R. Farnum, “Control charts for short runs: nonconstant process and measurement error”, *Journal of Quality Technology*, Vol. 24, No. 3, 1992, pp. 138-144.
 38. D. C. Montgomery, J. B. Keats, G. C. Runger, and W. S. Messina, “Integrating statistical process control and engineering process control”, *Journal of Quality Technology*, Vol. 26, No. 2, 1994, pp. 79-87.
 39. K. C. Roes, R. J. Does, and Y. Schurink, “Shewhart-type control charts for individual observations”, *Journal of Quality Technology*, Vol. 25, No. 3, 1993, pp. 188-198.
 40. C. Damour, M. Benne, B. Grondin-Perez, and M. Bessafi, “

- Polymer electrolyte membrane fuel cell fault diagnosis based on empirical mode decomposition”, *J Power Sources*, Vol. 299, 2015, pp. 596-603.
41. B. Legros, P. X. Thivel, Y. Bultel, M. Boinet, and R. P. Nogueira, “Electrochemical Impedance and Acoustic Emission Survey of water desorption in nafion membranes”, *Electrochem Solid-State Lett*, Vol. 12, 2009, pp. B116.
 42. Z. Zheng, R. Petrone, M. C. Péra, D. Hissel, M. Becherif, C. Pianese C, N. Yousfi Steiner, and M. Sorrentino, “A review on non-model based diagnosis methodologies for PEM fuel cell stacks and systems”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 38, 2013, pp. 8914-8926.
 43. K. Teranishi, S. Tsushima, and S. Hirai S. “Analysis of water transport in PEFCs by magnetic resonance imaging measurement”, *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 153, 2006, pp. A664-A668.
 44. J. Wu, X. Z. Yuan, H. Wang, M. Blanco, J. J. Martin, and J. Zhang, “Diagnostic tools in PEM fuel cell research: Part I Electrochemical techniques”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 33, 2008, pp. 1735-1746.
 45. X. Yuan, H. Wang, J. C. Sun, and J. Zhang, “AC impedance technique in PEM fuel cell diagnosis—A review”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 32, 2007, pp. 4365-4380.
 46. G. Mousa, F. Golnaraghi, J. Devaal, and A. Young, “Detecting proton exchange membrane fuel cell hydrogen leak using electrochemical impedance spectroscopy method”, *J. Power Sources*, Vol. 246, 2014, pp. 110-116.
 47. S. Fukuhara, N. Marx, K. Ettihir, L. Boulon, Y. Ait-Amirat, and M. Becherif, “A lumped fluidic model of an anode chamber for fault tolerant strategy design”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 41, No. 50, 2016, pp. 37-47.
 48. T. Escobet, D. Feroldi, S. de Lira, V. Puig, J. Quevedo, J. Riera, and M. Serra, “Model-based fault diagnosis in PEM fuel cell systems”, *J. Power Sources*, Vol. 192, 2009, pp. 216-223.
 49. G. Tina, S. Wasterlain, D. Candusso, F. Harel, D. Hissel, and X. Francois, “Identification of failed cells inside PEMFC stacks in two cases: Anode/cathode crossover and anode/cooling compartment leak”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 35, 2010, pp. 2772-2776.
 50. S. Lira, V. Puig, J. Quevedo, and A. Husar, “LPV observer design for PEM fuel cell system: Application to fault detection”, *Int. J. Power Source*, Vol. 196, 2011, pp. 4298-4305.
 51. W. Y. Lee, G. G. Park, T. H. Yang, Y. G. Yoon, and C. S. Kim, “Empirical modeling of polymer electrolyte membrane fuel cell performance using artificial neural networks”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 29, 2004, pp. 961-966.
 52. A. Saengrung, A. Abtahi, and A. Zilouchian, “Neural network model for a commercial PEM fuel cell system”, *J. Power Sources*, Vol. 172, 2007, pp. 749-759.
 53. K. M. Kamal, D. Yu, and D. L. Yu, “Fault detection and isolation for PEM fuel cell Stack with independent RFB model”, *Eng. Appl. Artif. Intell.*, Vol. 28, 2014, pp. 52-63.
 54. N. Y. Steiner, D. Hissel, P. H. Mocoteguy, and D. Candusso, “Diagnosis of polymer electrolyte fuel cells failure modes (flooding & drying out) by neural networks modeling”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 36, 2011, pp. 3067-3075.
 55. D. Hissel, M. C. Pera, and J. M. Kauffmann, “Diagnosis of automotive fuel cell power generators”, *J. Power Sources*, Vol. 128, 2004, pp. 239-246.
 56. E. Lechartier, E. Laffly, M. C. Pera, R. Gouriveau, D. Hissel, and N. Zerhouni, “Proton exchange membrane fuel cell behavioral model suitable for prognostics”, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 40, 2015, pp. 8384-8397.
 57. Z. D. Zhong, X. J. Zhu, and G. Y. Cao, “Modeling a PEMFC by a support vector machine”, *J. Power Sources*, Vol. 160, No. 1, 2006, pp. 293-298.
 58. X. Li, G. Y. Cao, and X. J. Zhu, “Modeling and control of PEMFC based on least squares support vector machines”, *Energy Convers. Manage.*, Vol. 47, No. 7, 2006, pp. 1032-1050.
 59. C. H. Li, X. J. Zhu, G. Y. Cao, S. Sui, and M. R. Hu, “Identification of the Hammerstein model of a PEMFC stack based on least squares support vector machines”, *J. Power Sources*, Vol. 175, No. 1, 2008, pp. 303-316.
 60. J. Hua, L. Lu, M. Ouyang, J. Li, and L. Xu, “Proton exchange membrane fuel cell system diagnosis based on the signed directed graph method”, *J. Power Sources*, Vol. 196, 2011, pp. 5881-5888.
 61. N. Chatti, B. Ould-Bouamama, A. L. Gehin, and R. Merzouki, “Merging Bond Graph and Signed Directed Graph to improve FDI procedure”, *European Control Conference (ECC)*, 2013, pp. 1457-1462.