

DOI: 10.11949/0438-1157.20251355

数据驱动的质子交换膜燃料电池膜电极性能跨工况优化

李明哲¹, 杨柳², 付凯豪², 李平², 曹晨熙¹

(¹ 华东理工大学能源化工过程智能制造教育部重点实验室, 上海 200237; ² 华东理工大学化工学院, 绿色化工与工业催化全国重点实验室, 上海 200237)

摘要: 质子交换膜燃料电池 (proton exchange membrane fuel cell, PEMFC) 低温适应性问题严重制约了其大范围商业应用。膜电极性质是决定 PEMFC 冷启动性能的根本因素, 然而针对冷启动调优膜电极往往导致常规工况性能下降。本文提出了一种数据驱动的 PEMFC 膜电极跨工况优化设计框架, 对阴、阳极催化层的关键组成和结构参数采样构建高保真机理数据集, 训练了基于支持向量机、高斯过程回归、径向基神经网络等方法的代理模型, 对冷启动性能关键指标的预测 R^2 均值达 0.968, 同时在常温性能预测中表现出很强的泛化能力。结合 AI (artificial intelligence) 代理模型与 NSGA-III (third-generation non-dominated sorting genetic algorithm) 算法有效权衡膜电极的跨工况性能, 优化的膜电极性质参数可提升 PEMFC 冷启动持续时长 29.6%、最大温升 11.9%, 或在维持低温耐受性下提升常规工况最大功率密度 3.6%, 为 PEMFC 膜电极的高效理性设计及快速产品迭代提供了重要的理论依据与技术支持。

关键词: 燃料电池; 计算机模拟; 优化设计; 机器学习; Pareto 最优

中图分类号: TM 911.4

文献标志码: A

文章编号: 0438-1157 (2026) 06-3526-19

Data-driven cross-condition optimization of membrane-electrode assembly performance of proton exchange membrane fuel cells

LI Mingzhe¹, YANG Liu², FU Kaihao², LI Ping², CAO Chenxi¹

(¹ Key Laboratory of Smart Manufacturing in Energy Chemical Process, Ministry of Education, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China; ² Key Laboratory of Green Chemical Engineering and Industrial Catalysis, School of Chemical Engineering, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China)

Abstract: The low-temperature adaptability of proton exchange membrane fuel cells (PEMFC) severely restricts their widespread commercial application. The properties of the membrane electrode assembly (MEA) are the fundamental factors determining the cold start performance of PEMFCs. However, optimizing the MEA for cold start often leads to a decline in performance under conventional conditions. This paper proposes a data-driven cross-condition optimization design framework for MEA of PEMFCs. A high-fidelity mechanism dataset is constructed by sampling key components and structural parameters of the anode and cathode catalyst layers. A surrogate model based on support vector machine, Gaussian process regression, and radial basis function neural network is trained, achieving a mean R^2 of 0.968 for key cold-start performance indicators, while also demonstrating strong

收稿日期: 2025-11-30 修回日期: 2026-02-05

通信作者: 曹晨熙 (1989—), 男, 博士, 副教授, caocx@ecust.edu.cn

第一作者: 李明哲 (1997—), 男, 硕士研究生, 892234574@qq.com

基金项目: 国家科技重大专项 (2025ZD1608400); 国家自然科学基金面上项目 (62573196); 上海市自然科学基金面上项目 (24ZR1414900); 工业控制技术全国重点实验室自主课题 (ICT2024A27); 中央高校基本科研业务费专项资金 (222202617006); 国家重点研发计划项目 (2023YFB4006101)

引用本文: 李明哲, 杨柳, 付凯豪, 李平, 曹晨熙. 数据驱动的质子交换膜燃料电池膜电极性能跨工况优化[J]. 化工学报, 2026, 77(6): 3526–3544

Citation: LI Mingzhe, YANG Liu, FU Kaihao, LI Ping, CAO Chenxi. Data-driven cross-condition optimization of membrane-electrode assembly performance of proton exchange membrane fuel cells[J]. CIESC Journal, 2026, 77(6): 3526–3544

generalization ability in room-temperature performance prediction. By integrating the AI surrogate model with the NSGA-III algorithm, the cross-condition performance of the MEA is effectively balanced. Optimized MEA property parameters can enhance the PEMFC cold start duration by 29.6% and the maximum temperature rise by 11.9%. Alternatively, maintaining low-temperature tolerance while increasing the maximum power density under conventional conditions by 3.6%, providing crucial theoretical basis and technical support for efficient rational design and rapid product iteration of MEA of PEMFCs.

Keywords: fuel cells; computer simulation; optimal design; machine learning; Pareto optimality

引 言

质子交换膜燃料电池(PEMFC)为一种高效、清洁的电化学能量转换装置,能够将氢燃料的化学能直接转化为电能,凭借其零排放和高功率密度的特性,在未来碳中和目标下的重载长距离运输、航运、航天等领域展现出巨大的应用潜力^[1-3]。然而,PEMFC的大范围商业化应用仍面临一系列严峻挑战。在环境适应性方面,PEMFC存在低温“冷启动”难题:当环境温度低于0℃时,电化学反应生成的水或膜电极组件(membrane electrode assembly, MEA)中的残留水易在多孔电极内部凝结成冰,不仅会阻塞气体流道、覆盖催化剂活性位点而导致启动失败,还可能引发MEA的不可逆结构损伤,如膜脆化、催化层剥落等,严重影响电池使用寿命^[4-5]。因此,实现PEMFC在-30℃等极端条件下的可靠、快速、无损自启动,是其大范围商用的前提之一^[6]。

PEMFC的冷启动性能及耐久性主要由其电极材料的组成和结构等本征性质决定^[7-9]。催化层(catalyst layer, CL)的孔隙率、厚度、离聚物/碳载体比例(I/C比)以及Pt载量等参数,对冷启动过程水热管理和电化学反应过程具有决定性影响,因此优化CL设计对于提升PEMFC冷启动性能至关重要。由于冷启动实验测试周期长、成本高昂,也难以实时直接观察电池内部的水-冰-热动态行为^[10-11],基于连续性假设的多物理场机理模型成为分析冷启动性能影响因素的主要研究手段^[6-7]。Yang等^[12]建立了耦合微观传输机制的团聚体模型,揭示了CL孔隙结构对冷启动失效模式的影响;随后,进一步提出了冷启动与常温性能的统一模型^[13],阐明了CL微观参数对宽温域电池性能的综合调控机制。此外,Liang等^[14]通过高精度多物理场动态仿真与实验,深入探究了结冰分布对电池性能衰减的非线性作用规律。然而,由于冷启动过程中热-质传递与涉及过冷水和结冰动力学的多相变过程复杂耦合,导致

高精度多物理场动态模拟效率低下,完成一次冷启动过程模拟的时间为数小时至数天,极大地限制了其在膜电极多重性质参数优化中的应用。

近年来,将人工智能(AI)代理模型与数据驱动的优化方法结合,已成为PEMFC部件及电堆设计、操作优化的有力工具^[15]。AI代理模型学习代表性的高精度数值模拟或实验数据,在保证预测精度的同时,极大提高计算效率,可将优化设计的总时长缩短 10^6 至 10^9 个量级。利用高精度仿真数据集建立机器学习代理模型再进行寻优的设计范式已在PEMFC的多个关联细分领域获得了广泛应用。针对PEMFC操作优化,Zhang等^[16]与Zhao等^[17]基于代理模型,分别完成了对温度、背压、湿度等多重操作参数的多目标寻优,有效提升了不同海拔下燃料电池的输出功率。Shi等^[18]利用数据驱动模型优化了停机吹扫策略以缓解内部液态水残留;而Yang等^[19]则针对阴极催化加热辅助的冷启动过程,定量揭示并优化了反应物供给与热量分配等控制参数。在膜电极材料优化层面,Wang等^[20]利用支持向量机(support vector machine, SVM)建立了由CL组成预测PEMFC常规工况性能的代理模型, R^2 达0.99以上,并结合遗传算法实现了CL组分的多目标优化。Li等^[21]及Siddiqua等^[22]分别采用多目标遗传算法和XGBoost框架设计了能源转换效率更高的CL,并揭示其构效关系。

由于常温工况下代理模型的成功,针对极端冷启动条件的MEA微观结构优化也逐步展开。Yu等^[23]结合深度学习算法,以抑制积冰生长、提升电池在极端低温下的启动耐久性为目标,将阴极CL孔隙率作为决策变量,优化了低温冷却液辅助加热启动过程。Liu等^[24]则选取孔隙率、离聚物比例等CL性质参数,采样CTnet建立代理模型,利用PSO-GA算法实现了冷启动时长和结冰均匀性的优化。然而,现有针对MEA微观结构的数据驱动优化研究普遍局限于冷启动或正常运行的单一工况。受膜电极

内电化学与传递过程的机理制约,有利于冷启动的结构设计,如增加阳极 CL 厚度以提升欧姆产热,或调控 I/C 比以增加储冰空间,往往会在常温大电流工况下引入额外的传质阻力,进而影响正常运行性能^[7]。因此,针对单工况设计的 MEA 不能支持 PEMFC 在完整操作周期内的优化运行。建立一种兼顾 PEMFC 冷启动操作与常温运行的 MEA 综合优化框架,显得尤为必要。

本文提出一种面向 PEMFC 冷启动响应能力与额定工况输出的数据驱动多目标优化设计框架,相较于已有的工作,创新之处在于:在数据获取与利用上,基于多物理场数值模拟,构建涵盖额定工况与 -15°C 冷启动工况性能的高保真数据集;在优化策略层面,分别建立并挑选针对不同工况性能预测的最优代理模型,结合多目标优化算法,以膜电极的 8 个微观结构参数为决策变量进行协同寻优。旨在通过该优化设计框架,揭示冷启动过程中的储冰、产热机制与常温大电流下传质需求之间的内在权衡规律,以期面向快速迭代的 PEMFC 膜电极理性设计提供一种全新的理论视角与方法论支撑。

1 方法

1.1 PEMFC 单电池冷启动及正常工况性能统一机理模型

为阐明 CL 微观结构与 PEMFC 冷启动性能的构效关系,本研究采用 Yang 等^[13]开发的耦合微观团聚体模型的三维直流单通道 PEMFC 冷启动模型,模型考虑了真实多孔碳载体结构对电池冷启动性能的影响。微观团聚体模型沿用文献^[12]设定。模型的三维几何涵盖了包括膜、电极、气体扩散层及双极板在内的全组件电化学-传热-传质过程,将 CL 等效为双分散孔隙结构的球形团聚体,通过区分初级孔与次级孔,实现了对不同位点传质阻力与电化学反应的独立计算。不同尺度数值模型的耦合机制为:求解器在每一时间步先通过 Navier-Stokes 方程确立宏观流场,随后在求解组分与能量方程时,于 CL 网格节点调用微观子模型。该子模型根据局部状态,计算受 Knudsen 扩散与冰晶遮蔽限制的体积电流密度及两类孔隙的独立结冰源项,并反馈回宏观方程。步内收敛后,更新的宏观场与微观积冰状态即被锁定为下一时刻初值,实现时间推进。最终,模型可同步输出冷启动宏观性能指标及孔隙级

微观机理变量(如电芯温度变化和动态积冰分数)。参考我国华北地区冬季典型气候条件^[25],将冷启动温度设置为 -15°C 。换热系数设置为 $55\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$,以复现冷启动失败的极限算例。同时,为了兼顾电池升温所需的电化学反应速率并防止催化层孔隙过早发生冰堵(模拟具有挑战性的恒流启动工况),将起始电流密度设为 $0.2\text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。除上述针对性调整的运行工况外,宏观及微观模型的其余操作条件,控制方程,关键假设,几何尺寸、材料属性及物理参数设置均严格沿用文献^[13]中的设定。

考虑到需同步讨论针对冷启动工况优化的 CL 性质在 PEMFC 常规运行工况(80°C)下的性能,本研究采用了文献^[13]的二维两相等温模型,该模型耦合了冷启动模型的团聚体子模型,并移除了冰相变机制。为了排除膜脱水导致的欧姆损失干扰并聚焦于催化层微观传质特性的研究,将模型的阳/阴极进气相对湿度均设定为 100%。同时,采用 3:4 的高进气计量比消除宏观流道内的反应物供应限制。其在阴极进气口和阳极进气口上的温度、反应气体摩尔分数和液态水分数分别为:

阳极

$$T_{\text{in,a}} = T_0, \quad p = p_a, \quad x_{\text{H}_2\text{O,a}}^0 = \frac{p_{\text{sat}} RH_a}{p_a}, \quad x_{\text{H}_2,a}^0 = 1 - x_{\text{H}_2\text{O,a}}^0 \quad (1)$$

阴极

$$T_{\text{in,c}} = T_0, \quad p = p_c, \quad x_{\text{H}_2\text{O,c}}^0 = \frac{p_{\text{sat}} RH_c}{p_c}, \quad (2)$$

$$x_{\text{O}_2,c}^0 = 0.21(1 - x_{\text{H}_2\text{O,c}}^0), \quad x_{\text{N}_2,c}^0 = 0.79(1 - x_{\text{H}_2\text{O,c}}^0)$$

式中, $T_{\text{in,a}}$ 和 $T_{\text{in,c}}$ 分别为阳极和阴极进气口温度,K; T_0 为电池标准工作温度,K; p_a 和 p_c 分别为阳极和阴极进气压力,Pa; p_{sat} 为该温度下的水蒸气饱和压力,Pa; RH_a 和 RH_c 分别为阳极和阴极进气相对湿度; $x_{\text{H}_2\text{O,a}}^0$ 和 $x_{\text{H}_2\text{O,c}}^0$ 分别为阳极和阴极进气中水蒸气的初始摩尔分数; $x_{\text{H}_2,a}^0$ 为阳极进气中氢气的初始摩尔分数; $x_{\text{O}_2,c}^0$ 和 $x_{\text{N}_2,c}^0$ 分别为阴极进气中氧气和氮气的初始摩尔分数。

本研究中的三维单通道冷启动模型与二维两相等温模型均假定固定的离聚物膜厚。根据文献^[26-27],即使忽略催化层离聚物 I/C 比变化引起的膜厚改变,模型仍能在误差允许范围内($<8.3\%$)复现实验结果。这表明,采用固定离聚物膜厚这一简化假设并未显著降低模型的预测准确性。

上述模型基于多物理场仿真平台 COMSOL Multiphysics^[28]实现。在数值求解策略上,采用了分

离求解方案,线性方程组通过 PARDISO 直接求解器^[29]求解。计算步长控制在 $10^{-5} \sim 10^{-1}$ s,收敛容差设置为 10^{-5} 以下。经网格无关性验证后,冷启动模型采用的网格数为 380000 个,常温模型采用的网格数为 48000 个。三维单电池冷启动模型的单次计算时间为 6~24 h,而一、二维常温模型的单次计算时长约为 5 min。本文所用模型已利用实验测试装置验证,详见文献^[13]。特别需要指出的是,本研究采用的耦合微观子模型的多尺度机理模型,在几何构建上并非将催化层简化为零维界面,而是保留了其物理实体厚度并进行了网格离散化。这种处理方式使得模型能够显式解析氧气从扩散层界面至催化层底部的局域传输梯度,从而克服了传统集总参数模型难以捕捉电极厚度效应的局限性。在此前的研究中^[13,9],该模型已在宽范围的实验数据(覆盖不同 Pt 载量与催化层厚度)下验证了预测精度。即便算法搜索至催化层厚度或组分含量发生剧烈变化的边界区域,模型仍能准确捕捉由此引发的非线性传质极化损失,保证了在整个宽广设计空间内优化结果的物理真实性。

1.2 数据的特征提取与代理模型数据集的建立

采用的团聚体模型定义了催化层的 5 个关键参数,即 CL 厚度 (δ_{CL} , μm)、CL 的孔隙率 (Eps_{CL})、离聚物碳比 (I/C)、单位膜面积上 Pt 负载量 (m_{Pt} , $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$),及 Pt 占 Pt/C 的质量分数 (ω_{Pt})。在冷启动机理层面,这些参数直接决定了 PEMFC 冷启动时内部的竞争机制: m_{Pt} 与 ω_{Pt} 决定了电化学反应活性面积(产热源); I/C 比调控质子传导率与微观氧气扩散阻力;而 δ_{CL} 与 Eps_{CL} 则共同决定了催化层的总孔隙体积,即冷启动过程中的“最大储冰容量”。

同时,在几何守恒约束下,为了保证建模符合物理实际,需处理参数间的耦合关系,由于 m_{Pt} 、 ω_{Pt} 、I/C 比及各组分密度确定后,催化层的固相与电解质相体积即已确定,此时若设定了 Eps_{CL} ,则 δ_{CL} 不再是独立变量,而是由体积守恒推导出的因变量,其具体数值可由式(1)~式(3)求得,式中的 ρ_{Pt} 、 ρ_C 和 ρ_{mb} 分别为催化层的铂、碳和膜的密度, $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。

$$\delta_{CL} = \frac{10m_{Pt}}{1 - Eps_{CL}} \left[\frac{1}{\rho_{Pt}} + \left(\frac{1}{\omega_{Pt}} - 1 \right) \left(\frac{1}{\rho_C} + \frac{I/C}{\rho_{mb}} \right) \right] \quad (3)$$

因此,选取 8 个阴阳极 CL 的关键性质参数:阴阳极 Pt 负载量 ($m_{Pt,a,c}$)、Pt 占 Pt/C 催化剂的质量分数 ($\omega_{Pt,a,c}$) 以及离聚物碳比 (I/C_{a,c}) 和 Eps_{CL} 作为代理模型的输入特征,不同参数的约束范围如表 1 所示。

表 1 催化层的关键参数取值范围

Table 1 Restrictive ranges of parameters for simulations

参数及其符号	上限	下限
阳/阴极 Pt 载量, $m_{Pt,a,c}$	0.1	0.5
阳/阴极 Pt 质量分数, $\omega_{Pt,a,c}$	0.1	0.4
阳/阴极离聚物碳比, I/C _{a,c}	0.4	1.2
阳/阴极催化层膜厚, $\delta_{a,c}$	3.0(阳极)/ 8.0(阴极)	5.0(阳极)/ 20.0(阴极)
阳/阴极孔隙率, Eps_{CL}	0.3	0.6

鉴于所建立的三维微观冷启动机理模型涉及多物理场强耦合,计算成本高昂,采用传统的 Monte Carlo 随机采样^[30]难以在有限的计算资源下实现对高维设计空间的有效覆盖。为此,本研究采用拉丁超立方采样^[31](latin hypercube sampling, LHS)策略构建初始数据集。LHS 是一种分层抽样技术,它将 8 个设计变量的取值范围分别划分为 100 个等概率区间,并依据最大最小距离准则进行采样,确保每个区间内有且仅有一个采样点。相比于简单随机采样,LHS 具有优异的空间填充性,能够以较小的样本规模最大限度地减少变量间的相关性并使之均匀覆盖整个设计空间。本研究采取样本容量 $N = 100$,将 LHS 生成的 100 组膜电极结构参数输入前文建立的冷启动模型和常温模型进行仿真计算,从中提取冷启动持续时间 (τ_{final} , s)、电池最终温升 (ΔT_{final} , $^{\circ}\text{C}$)、阴极 CL 团聚体内的最终结冰量 ($V_{ice,final}$, mm^3) 作为冷启动性能标签,同时提取最大输出功率密度 (P_{max} , $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$) 及其对应的电流密度 ($I_{p,max}$, $\text{A} \cdot \text{cm}^{-2}$) 作为常温性能标签。为保证各个输入特征的量纲相同,将上述的由结构参数组成的特征数据集进行归一化处理,随后与提取的输出指标共同构建了用于训练机器学习代理模型的高质量数据集。为了验证有限样本量 ($N = 100$) 在覆盖高维设计空间时的充分性,本研究进一步进行了样本敏感性分析。分析结果表明,得益于 LHS 策略优异的空间填充特性,当训练集样本数增加至 80 组以上时,代理模型的交叉验证预测误差已趋于收敛(即 RMSE 下降梯度显著放缓)。这证实了当前 100 组样本已包含足以构建高保真代理模型的关键物理特征,能够满足后续预测精度的要求。

1.3 代理模型的建立与训练

鉴于 PEMFC 冷启动过程中微观结构与宏观性能之间的映射关系具有强非线性与隐式耦合特征,目前尚无充足的先验知识能预判何种算法机制最

适配此类复杂多维空间下的数据特征。考虑到本文提取的极端冷启动失效数据集样本容量较小,为了筛选出泛化能力最优的代理模型,本研究系统地引入了五类机器学习模型进行平行对比。首先,引入线性回归作为基线模型并量化MEA结构-冷启动性能的线性相关性;其次,选取支持向量回归与高斯过程回归作为核方法的代表,二者分别基于结构风险最小化和贝叶斯非参数推断,在处理小样本的连续映射问题上具有公认的优势;再次,采用径向基神经网络作为神经网络代表,发挥其强大的局部逼近能力;最后,引入树模型集成学习算法(XGBoost与CatBoost),利用其捕捉数据特征间高阶非线性交互关系的能力,并在小样本环境下通过内置正则化机制有效抑制过拟合。依托统一的测试集及客观统计指标,筛选出用于多目标优化的最优代理模型。

实验基于Python 3.10环境搭建计算平台,所有算法的关键超参数均通过网格搜索策略配合5折交叉验证选出。各模型的具体实现细节与所需调节的核心超参数如下:

(1) 线性基准模型:线性回归(linear regression, LR) 作为对比基准,本研究调用scikit-learn库^[32],采用普通最小二乘法(OLS)构建线性回归模型。LR旨在寻找系数向量 $\mathbf{w}_{\text{LR}}$,使得目标函数的残差平方和最小化。由于OLS-LR属于无偏估计且无额外超参数,其训练结果反映了数据在纯线性假设下的最佳拟合程度。

(2) 核方法模型:支持向量回归^[33](support vector regression, SVR) 鉴于模型的预测目标为连续变量,本研究采用scikit-learn库中的SVR算法。用于回归问题的SVR旨在训练出一个处于高维特征空间的超平面,使其构建的 ε -管道能包含尽可能多的样本点,并同时使该超平面的平坦度最大以避免过拟合。该算法利用核技巧将输入向量升维,其模型可由下式表示:

$$f_{\text{LR}}(\mathbf{x}) = \langle \mathbf{w}_{\text{SVR}}, \boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x}) \rangle + b \quad (4)$$

式中, $\mathbf{x}$ 为输入向量; $\langle \mathbf{w}_{\text{SVR}}, \boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x}) \rangle$ 为输入与权值向量高维空间的内积, $\boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x})$ 为输入在高维空间的映射, $\mathbf{w}_{\text{SVR}}$ 、 b 为对应维度的权值向量。

为了在数学上实现前述的最大平坦度与 ε -管道约束,SVR引入了特有的 ε -不敏感损失函数,仅当预测偏差超出阈值 ε 时才计算损失;利用松弛变量 ξ_i 、 ξ_i^* 将回归问题转化为如下的凸二次规划优化

问题:

$$\begin{aligned} \min_{\mathbf{w}, b, \xi, \xi^*} & \frac{1}{2} \|\mathbf{w}_{\text{SVR}}\|^2 + C \sum_{i=1}^N (\xi_i + \xi_i^*) \\ \text{s.t.} & \begin{cases} y_i - (\mathbf{w}_{\text{SVR}}^T \boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x}_i) + b) \leq \varepsilon + \xi_i \\ (\mathbf{w}_{\text{SVR}}^T \boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x}_i) + b) - y_i \leq \varepsilon + \xi_i^* \\ \xi_i, \xi_i^* \geq 0 \end{cases} \end{aligned} \quad (5)$$

决定SVR算法预测性能的三个关键可调超参数为惩罚系数 C 、拟合容忍度 ε 以及核函数 $\boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x})$ 。其中惩罚系数 C 为模型的正则化系数,决定了优化算法如何权衡模型平坦度与训练误差总和间的关系。拟合容忍度 ε 代表优化过程中可忽视误差的范围,决定了模型的拟合精度。核函数 $\boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x})$ 则是如何将输入特征映射至更高维的方法。上述三个超参数(C , ε , $\boldsymbol{\phi}_{\text{SVR}}(\mathbf{x})$)共同决定了SVR模型的泛化性能。

(3) 概率模型:高斯过程回归^[34](gaussian process regression, GPR) GPR是一种基于贝叶斯理论的非参数模型,如式(6)所述,该模型假设所求的拟合函数 $f_{\text{GP}}(\mathbf{x})$ 服从均值为 $m(\mathbf{x})$ 的高斯过程,在实际使用中一般将 $m(\mathbf{x})$ 设0,并使用核函数 $\mathbf{k}(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$ 表示高斯过程的协方差矩阵。

对于训练集中的 N 个样本,其观测值 Y 可视为 $f_{\text{GP}}(\mathbf{x}) + \varepsilon_{\text{GP}}$,其中 ε_{GP} 为观测噪声,服从均值为0、方差为 σ_n^2 的 N 维高斯分布。根据高斯过程的定义,此时观测值 Y 也同样服从 $N(0, \mathbf{K} + \sigma_n^2 \mathbf{I})$ 的 N 维高斯分布,其中的 $\mathbf{K}$ 为 $N \times N$ 的核矩阵, $\mathbf{I}$ 为单位矩阵。

$$f(\mathbf{x}) \sim GP(m(\mathbf{x}), \mathbf{k}(\mathbf{x}, \mathbf{x}')) \quad (6)$$

对于待预测点 $\mathbf{x}_*$,其函数值 $f(\mathbf{x}_*)$ 和 Y 的联合概率分布如式(7)所示。

$$\begin{bmatrix} Y \\ f(\mathbf{x}_*) \end{bmatrix} \sim N \left(\mathbf{0}, \begin{bmatrix} \mathbf{K} + \sigma_n^2 \mathbf{I} & \mathbf{K}_* \\ \mathbf{K}_*^T & \mathbf{K}_{**} \end{bmatrix} \right) \quad (7)$$

式中, $\mathbf{K}_*(N \times 1)$ 为待预测点与训练集的协方差向量; $\mathbf{K}_*^T$ 为 $\mathbf{K}$ 转置; $\mathbf{K}_{**}$ 为待测点 $\mathbf{x}_*$ 自身的方差。由高斯条件化规则^[34],此时模型预测目标 $p(f(\mathbf{x}_*)|Y)$ 为一维高斯分布,其期望如式(8)所示:

$$\bar{f}_* = \mathbf{K}_* [\mathbf{K} + \sigma_n^2 \mathbf{I}]^{-1} Y \quad (8)$$

式中, $\bar{f}_*$ 即为模型对点 $\mathbf{x}_*$ 的无噪声估计。作为无参数模型,GPR模型的求解过程可描述为找到核函数 $\mathbf{k}(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$ 的最优参数,使得在该参数组合下,观测数据出现的概率(即边际似然)最大。本研究采用的核函数为该问题最常见的径向基核函数,如式(9)所示,所求函数 $f(\mathbf{x})$ 的输入 $\mathbf{x}, \mathbf{x}'$ 越相似,函数的输出就越相近。优化策略为最大化对数边际似然^[34],模型超参数即为核函数可调参数——长度尺度 l 、信

号方差 σ_f^2 的初值、噪声方差 σ_n^2 。噪声 ε 可视为0(程序中取一个极小值以避免矩阵不可逆导致Cholesky^[34]分解失败)。从模型的训练和预测过程可知,训练数据集和测试数据集的标签需要进行归一化处理以符合模型的先验假设。

$$k(\mathbf{x}, \mathbf{x}') = \sigma_f^2 \exp\left(-\frac{\|\mathbf{x} - \mathbf{x}'\|^2}{2l^2}\right) \quad (9)$$

(4) 神经网络模型:径向基神经网络^[35](radial basis function neural network, RBFNN) 本研究使用的RBFNN模型使用pytorch框架搭建。作为一个三层前馈神经网络,RBFNN通过在隐藏层使用径向基函数(高斯核 ϕ)作为激活函数,将输入非线性地映射到高维特征空间,从而在该空间中实现线性拟合。模型可由式(10)描述。

$$y(\mathbf{x}) = \sum_{j=1}^M w_j \phi_j(\mathbf{x}) + b \quad (10)$$

式中, $y(\mathbf{x})$ 为模型的预测输出; $\mathbf{x}$ 为模型的输入向量; M 为径向基神经元数量; w_j, b 为网络权值, $\phi_j(\mathbf{x})$ 表示输入 $\mathbf{x}$ 经RBF网络第 j 个神经元的输出,其计算式如下式所示:

$$\phi(\mathbf{x}) = \exp\left(-\frac{\|\mathbf{x} - \mathbf{c}\|^2}{2\sigma^2}\right) \quad (11)$$

式中, $\mathbf{c}$ 为RBF神经元的中心向量; σ 为高斯核的宽度常数。训练目标为通过对输入变量 $\mathbf{x}$ 的一系列前向-反向传播的负反馈迭代过程,使得模型输出与标签值的误差最小。

由式(10)和式(11)可知,RBF神经网络的关键超参数包括隐藏层神经元的数量、优化器的选择及其配置参数(如学习率 η)等。为简化超参数优化过程,本研究将RBF神经元的中心向量 $\mathbf{c}$ 和宽度参数 σ 视为模型参数,在训练开始前于设定区间内随机初始化,在训练过程中与输出层权重一起由优化器通过反向传播算法求得最优解。

(5) 集成学习模型:梯度提升决策树^[36](gradient boosting decision tree, GBDT) 该类模型采用Boosting串行迭代策略,通过构建多棵决策树逐步拟合前一轮预测值的负梯度(残差)。本研究选取了两种代表性的具有不同的抗过拟合方法的GBDT算法——XGBoost^[37](eXtreme gradient boosting)与CatBoost^[38](categorical boosting)作为代表该类机器学习方法的代理模型。其中XGBoost模型在二阶Taylor展开与显式正则化的基础上,特别采用了DART(dropout via additive regression trees)机制,借鉴深度学习的Dropout策略,在迭代中随机抛

弃部分树以克服对前序树的过度依赖。针对小样本特征,本研究重点优化了DART特有的抛弃率、L1/L2正则化权重以及行列子采样率,旨在通过多重约束显著降低模型方差并抑制过拟合。而CatBoost模型利用排序提升策略解决预测偏移问题,并采用对称决策树结构以平衡泛化能力与推理速度。本研究重点优化了L2叶节点正则化系数、树深度及叶节点最小样本数以严格控制模型复杂度;同时结合贝叶斯自助采样与特征列采样,进一步增强模型在小样本环境下的鲁棒性。

为评价不同模型的优劣,在训练完成后,本研究给出了不同类别模型在80组训练集样本和20组测试集样本的均方误差(mean square error, MSE)、平均绝对百分比误差(mean absolute percentage error, MAPE)以及相关系数 R^2 :

$$MSE = \frac{\sum_{i=1}^n (f_i - y_i)^2}{n} \quad (12)$$

$$MAPE = \frac{\sum_{i=1}^n |(f_i - y_i)/y_i| \times 100}{n} \quad (13)$$

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (f_i - y_i)^2}{\sum_{i=1}^n (f_i - \bar{y})^2} \quad (14)$$

式中, y_i 和 f_i 分别为模型预测的和真实的目标值; $\bar{y}$ 为真实目标值的平均值; n 为样本容量。当MSE和MAPE的值越小,且 R^2 的值越接近1.0时,说明模型预测的越精准。需要说明的是,由于标准化的目标值存在接近0的值,因此本研究中部分MAPE计算值较大。

1.4 NSGA-III多目标优化

本研究提出了一种兼顾PEMFC冷启动及常规工况性能的跨工况CL多目标优化方案,旨在借助数据驱动代理模型的高效预测能力,实现CL设计的快速迭代与寻优。具体的技术路线如图1所示。首先,基于建立的多尺度耦合仿真模型进行数值实验,获取不同CL微观性质参数下的冷启动性能响应,从而构建用于代理模型训练的高质量数据集;其次,对比分析多种机器学习算法的回归性能,遴选并训练出具有最优泛化能力的代理模型;最后,将该高精度代理模型嵌入多目标优化算法中作为适应度评价函数,求解得到平衡多个冷启动关键指标的Pareto非支配解集,并据此深入剖析关键设计变量与冷启动性能之间的构效关系。

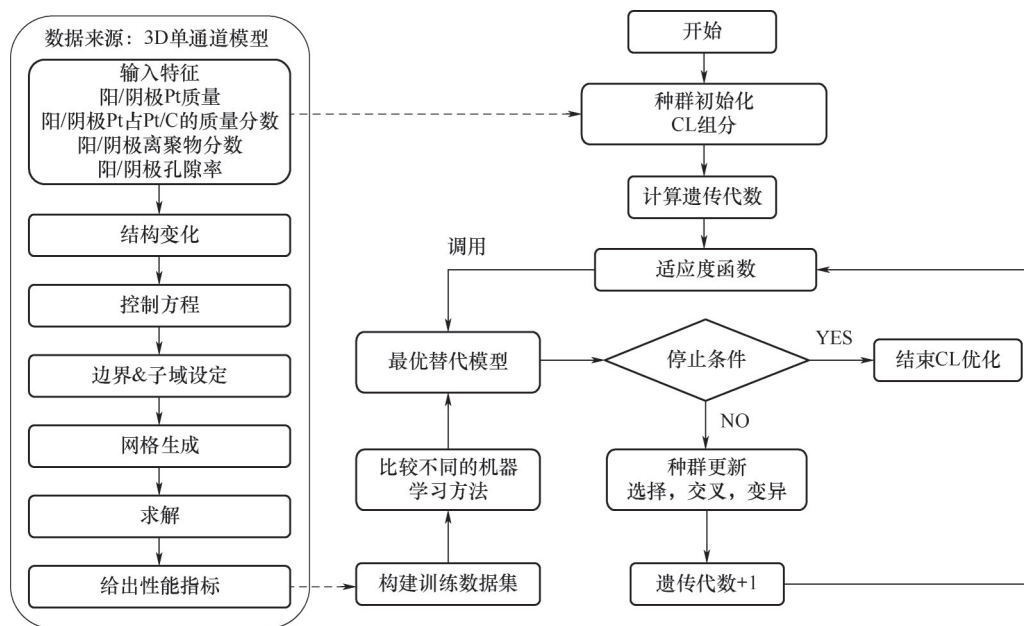


图1 数据驱动的面向 PEMFC 冷启动性能的催化层组分优化方法

Fig.1 Flow chart of data-driven optimization of catalyst layer components for PEMFC cold-start performance

由于需要兼顾 PEMFC 冷启动性能及常温性能, 本研究的优化问题最多同时涉及五个优化目标, 属于高维多目标优化问题。在此类高维空间中, 传统算法如 NSGA-II (non-dominated sorting genetic algorithm II) 依赖的“拥挤度距离”机制难以有效维持种群多样性, 容易导致解集收敛性差或陷入局部极值。因此, 本研究采用引入参考点机制的 NSGA-III 算法^[39]作为核心求解器。NSGA-III 基于参考点的选择机制使得每一代种群基于目标空间全局的绝对坐标进行匀散化排布, 避免了基于距离的拥挤度量在高维空间中区分度丧失, 导致种群分布不均和早熟收敛等问题。本研究采用 Das 和 Dennis 的系统方法^[40]在归一化的目标空间中生成分布均匀的参考向量, 并使用高性能 Python 进化算法工具箱 Geatpy^[41]搭建目标函数和 NSGA-III 搜索流程。算法的种群的编码方式设置为实整数编码, 变异率 P_m 、交叉率 P_c 分别设置为 0.1 和 0.9, 初始总群数 N_{Herd} 为 400, 最大迭代次数为 2000, 关于该算法的具体迭代步骤与筛选细节, 详见文献^[39]中的原始描述, 此处不再赘述。

初始种群在符合表 1 给出的 CL 性质参数取值范围中随机生成, 注意到由于数据集为归一化数据, 由该数据集训得的代理模型(适应度评估器)在使用时需将种群按照训练集各特征的最大值和最小值进行归一化。而在评估种群与参考向量的垂直距离时, NSGA-III 算法内置了归一化方法而毋须

使代理模型进行归一化输出。

为了从 Pareto 前沿最优解集中筛选出较为理想的点, 本研究采用优劣解距离法^[42] (technique for order preference by similarity to ideal solution, TOPSIS) 针对含有多个不同性能指标的 CL 设计参数组合进行性能排序。该算法的核心思想为: 评价一个具有多维度指标的样本时, 一个好的样本应距离“正理想解”(所有指标均为最优值)最近的同时距离“负理想解”(所有指标均为最劣值)最远。TOPSIS 算法可以为不同的指标的得分设置不同的权值, 以体现决策者对不同性能的偏好。为了均衡兼顾 PEMFC 的冷启动性能与常温性能, 本研究赋予所有评价指标同等的权重。

2 结果和讨论

2.1 数据集相关性分析

数据集的散点图矩阵与各个特征与性能指标间的 Pearson 相关性如图 2 所示。由图 2 中左下角数据集中特征两两间的散点图和对应的相关性热力块可知, 前文对于 CL 性质参数使用的拉丁超立方采样是成功的。前 8 个输入特征间的相关系数数值普遍介于 -0.2 至 0.2 之间, 且散点呈现无规律的弥散分布。这表明拉丁超立方采样成功实现了输入特征在参数空间内的解耦与正交化, 最大限度地减少了变量间的相关性, 从而避免了多重共线性对后续特

征重要性分析的干扰。在此基础上观察对角线的直方图可知,三个标签结果均呈现出明显的偏态分布,而非正态分布。这是符合预期的,考虑到多物理场仿真高昂的计算成本,本研究的100组样本数据旨在有效探索可行参数空间,而非生成严格服从标签正态分布的大型统计数据集。由对角线的直方图可知,Dur主要分布在50~120 s之间,UTE主要分布在10~12℃之间,而Vice主要分布在0.2~1.5 mm³之间。值得注意的是,输出变量间的相关性揭示了冷启动失败的物理本质。图中Dur与Vice的相关系数高达1.00,且Dur与UTE的相关系数亦达到0.87。这两个极强的线性相关印证了本研究采用“全失败算例”的物理假设:在冷启动失败模式下,Dur实质上即为催化层有效孔隙容积被冰填满所需

时间的直接度量。持续时间越长,不仅意味着该微观结构具有更大的物理容冰极限,同时也意味着产热过程更久,从而导致更高的UTE,和孔隙内更多的积冰体积Vice,三者物理机理上高度自洽。

图2的右上角出了不同特征与标签之间的Pearson相关系数热力图。本研究给出的8个CL性质参数中,阴极铂载量 $m_{Pt,c}$ 与冷启动性能的线性相关性显著高于阳极的同类参数,这似乎说明了冷启动的水热管理瓶颈主要位于阴极侧。相较于阴极参数中的其余三者,阴极I/C比与目标间的相关系数更小一些,这可能是因为I/C比在当前设计空间内不是限制冷启动性能的“瓶颈”因素。同时,应注意到阳极孔隙率和阴极孔隙率在对冷启动性能的影响力表现出显著不同,阳极孔隙率(Eps_{cl})与三个

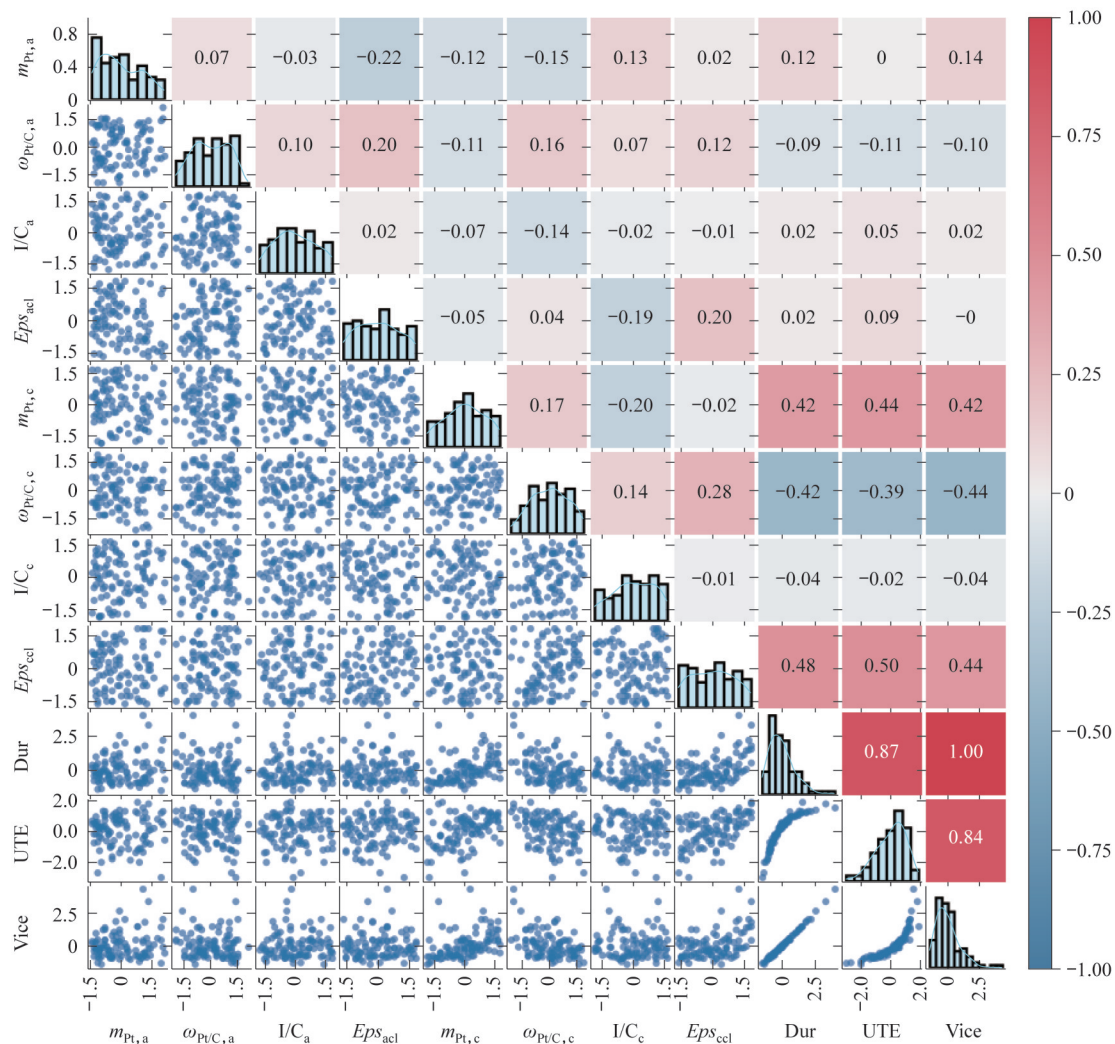


图2 选取的100组不同阳/阴极CL配置和其冷启动性能指标数据集的散点图矩阵与相关性分析(Dur为冷启动的持续时间 τ_{final} ;UTE为电池最终温升 ΔT_{final} ,Vice为阴极CL团聚体内的最终结冰量 $V_{ice,final}$)

Fig.2 Scatterplot matrix and correlation analysis of the dataset ($n=100$), detailing selected key configurations of anode/cathode CLs and their corresponding cold start performance metrics

性能指标的相关系数均接近于 0 (分别为 0.02, 0.09 和 0), 表明其变化几乎不直接影响冷启动结果。相反, 阴极孔隙率(Eps_{CL})与三个性能指标均呈现出显著的正相关性, 相关系数分别达到 0.48、0.50 和 0.44。产生这一差异的原因可能是析氧还原反应主要发生在阴极, 生成的水直接在阴极催化层积聚并结冰。较高的阴极孔隙率意味着更大的有效孔隙容积, 能够容纳更多的生成冰, 从而显著延长冷启动的持续时长并允许产生更多的反应热, 而阳极侧由于不直接产生水, 且在冷启动短时间内水分反扩散有限, 其孔隙结构对水热平衡及最终性能的影响因此变得较弱。

最后, 值得一提的是, 尽管输入参数间存在显著的敏感性差异, 但本研究采用的 NSGA-III 算法系基于 Pareto 支配关系进行驱动。在进化计算的过程中, 高敏感性参数的微小扰动即会引起目标函数的剧烈变化, 从而主导个体的优胜劣汰。因此, 算法施加的进化压力会自动聚焦于这些关键参数, 确保其收敛至最优区间, 而不会受低敏感性参数(阳极参数)的干扰。

2.2 代理模型预测性能评价

不同代理模型的预测性能评估结果如表 2 所示。综合分析表 2 数据, 通过对比各模型在测试集

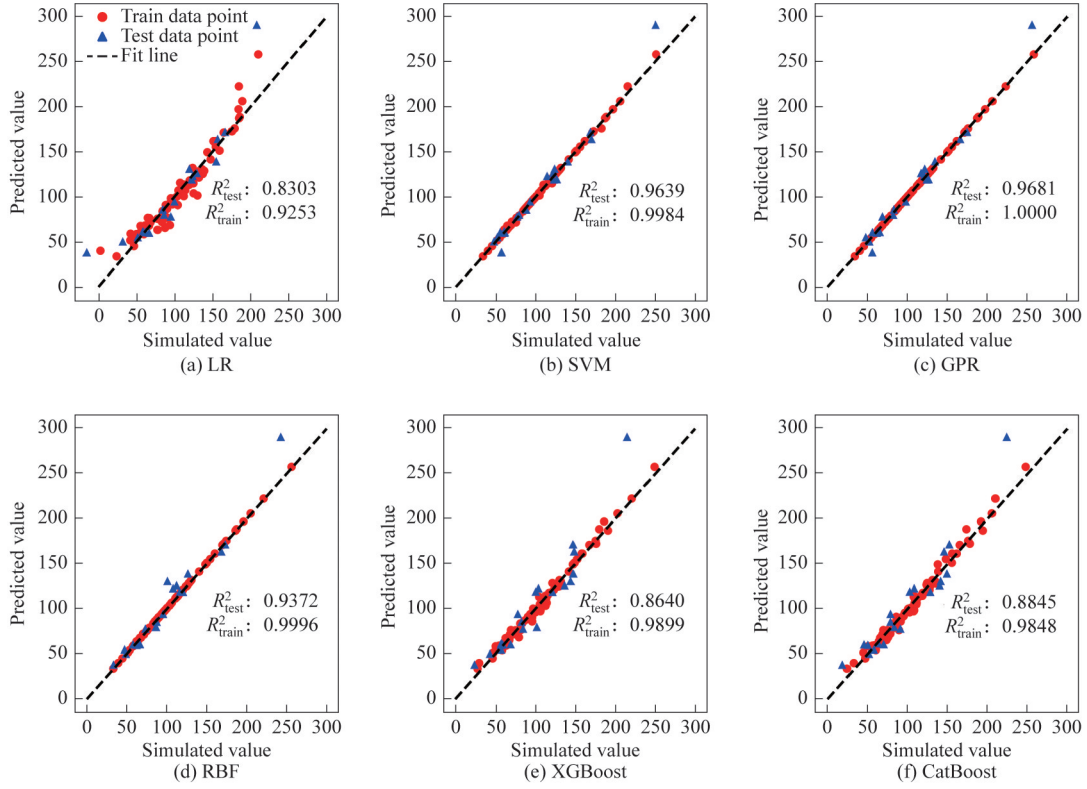
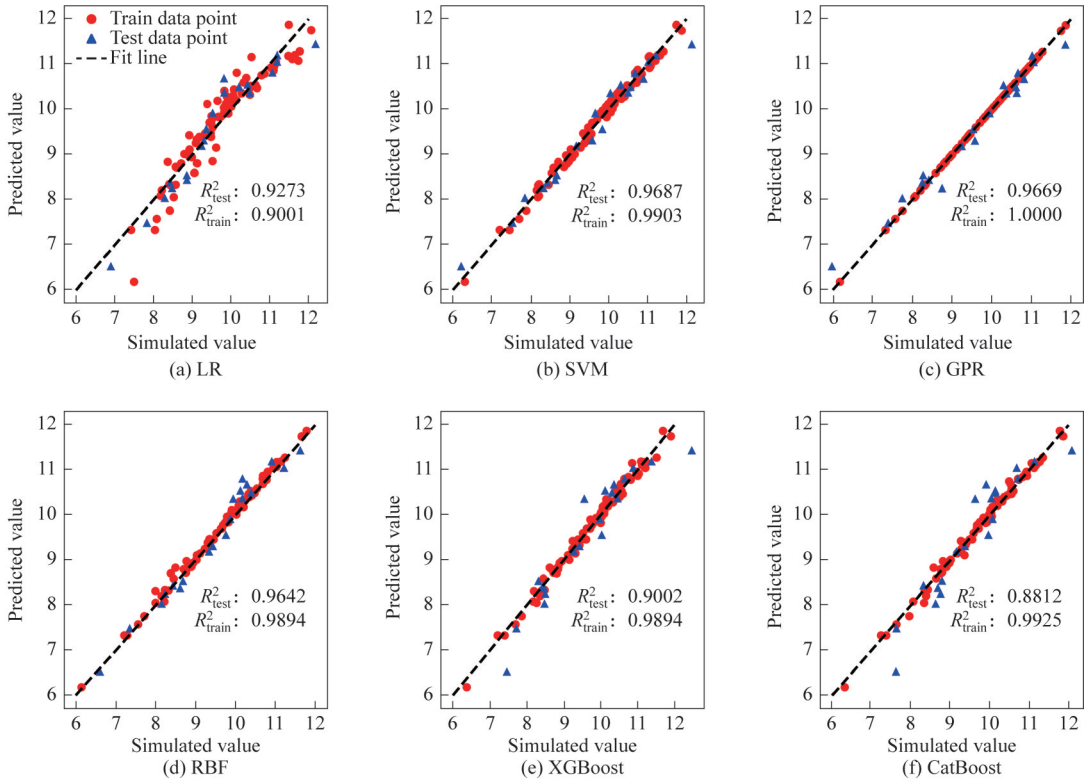
上 R^2 和 MAPE 上的均值表现, 结果表明 SVM 具有最优的综合预测性能, 其 R^2 均值为 0.968, MAPE 均值为 0.0486。相比之下, LR 的表现最差, 其在 $V_{ice, final}$ 预测上的 R^2 仅为 0.790。LR 与 SVM/GPR 之间巨大的性能差别(平均 R^2 差值接近 0.2), 说明输入参数与结冰过程特征之间存在着高度的非线性映射关系, 简单的线性模型无法捕捉这一特征。尽管 Xgboost 和 CatBoost 等集成树模型在许多领域表现优异, 但在本研究的数据集上, 它们的表现($R^2=0.86\sim0.90$)逊于其他三个使用核方法的模型 SVM、GPR 和 RBFNN。此外, 观察 GPR 的数据发现, 其训练集 MSE 为 0 且 R^2 为 1, 这是高斯过程插值的典型特征, 尽管如此, 其在测试集上依然保持了极高的精度, 并未出现过拟合。

为了进一步直观评估模型的泛化能力, 在图 3~图 5 中绘出不同模型对冷启动持续时间、最终温升和最终积冰体积的预测值与真实值的散点分布, 红色圆点表示训练集样本, 蓝色三角块表示测试集样本。3 个使用核技巧的模型(SVM、GPR、RBFNN)无论对于反映热力学特性的温度变化[图 4(b)~(d)], 还是涉及相变过程的积冰量[图 5(b)~(d)]指标均表现出良好的预测效果, 且测试集与训练集的 R^2 接近, 表明较好的泛化能力。相比之下, LR 模型无法

表 2 不同代理模型的预测能力比较

Table2 Performance comparison of the different surrogate models

指标	模型	MSE		MAPE		R^2	
		训练集	测试集	训练集	测试集	训练集	测试集
τ_{final}	LR	144.62	551.27	0.0935	0.1511	0.925	0.830
	SVM	16.35	151.9	0.0132	0.0515	0.997	0.964
	GPR	0	102.7	0	0.0735	1	0.968
	RBF	0.8149	173.55	0.0092	0.0804	0.999	0.937
	Xgboost	13.889	299.33	0.0339	0.1103	0.990	0.864
	CatBoost	31.65	415.44	0.0494	0.1260	0.985	0.885
ΔT_{final}	LR	0.122	0.131	0.0286	0.0299	0.900	0.927
	SVM	0.007	0.0528	0.0083	0.0191	0.990	0.969
	GPR	0	0.0594	0	0.0210	1	0.967
	RBF	0.013	0.106	0.0093	0.0284	0.989	0.964
	Xgboost	0.0214	0.2085	0.0118	0.0404	0.989	0.900
	CatBoost	0.0086	0.207	0.0082	0.0421	0.993	0.881
$V_{ice, final}$	LR	0.0110	0.0487	0.1405	0.2315	0.914	0.790
	SVM	0.0013	0.0151	0.0150	0.0751	0.994	0.971
	GPR	0	0.01116	0	0.1182	1	0.953
	RBF	7.5×10^{-5}	0.013	0.0117	0.1303	0.999	0.932
	Xgboost	0.0058	0.0389	0.0967	0.1571	0.933	0.807
	CatBoost	0.0022	0.0391	0.0726	0.1627	0.968	0.805

图3 不同代理模型对 τ_{final} 在训练集和测试集上的预测结果对比Fig.3 The predicted results of data-driven surrogate model for τ_{final} on training set and test set using different ML methods图4 不同代理模型对 ΔT_{final} 在训练集和测试集上的预测结果对比Fig.4 The predicted results of data-driven surrogate model for ΔT_{final} on training set and test set using different ML methods

捕捉复杂的非线性映射关系,测试集 R^2 仅为0.790,预测点严重偏离 $y=x$ 对角线,这一现象在非线特征最显著的结冰量预测中尤为突出[图5(a)],表明简单的线性回归确实无法描述伴随相变的复杂传质过程。尽管XGBoost和CatBoost在统计均值上表现尚可,但在图3(e)和图4(f)中,测试集样本相比于训练样本明显偏离对角线,暗示树模型在小样本高维数据下存在过拟合现象,其泛化能力不如基于核方法的SVM、GPR、RBFNN模型。综合考虑预测精度与泛化能力,SVM被选定为后续分析的最佳代理模型。

2.3 多孔电极结构设计的数据驱动多目标优化

2.3.1 PEMFC冷启动性能的优化 将求得的最佳代理模型作为适应度评估器耦合进NSGA-III优化流程,优化目标设置为最大化冷启动的持续时长 τ_{final} 、最大化电池最终温升 ΔT_{final} 以及最小化阴极CL团聚体内的最终结冰量 $V_{\text{ice,final}}$ 。图6展示了NSGA-III算法求解得到的Pareto非支配解集分布及其在各个平面的二维投影,解集包含的非支配解数量为190个。散点图的分布形态揭示出各优化目标之间复杂的权衡关系:温升-持续时长呈现强线性相关,意味着要实现更高的温升,必须依赖更长时间的电

化学反应产热积累。然而该性能收益也伴随相应的风险,从“最终结冰量-持续时长”的投影平面可见,随着启动时间的延长,反应生成水不断累积,导致结冰量单调上升。因此,整个Pareto前沿呈现为一个长条带状结构,清晰地反映了“高性能(长时、高温)”与“低风险(少冰)”之间的核心矛盾。

为了从复杂的解集中筛选出最具工程应用价值的CL性质参数组合,采用等权值TOPSIS方法对所有帕累托解进行综合评分排序,图6中特别标记了评分最高的最优设计点A,而表3详细列出了评分排名前3位的设计点(A、B、C)与基础CL配置(Base)的性能对比,其中Base代表一款实际商用的PEMFC催化层配置。

排名第二的点B代表了倾向于“冷启动性能最大化”的方案。它实现了最长的启动时间(161.65 s)和最高温升(11.17 K),但结冰量高达 1.095 mm^3 ,这种过量的结冰风险使其在综合评分中逊于点A。排名第三的点C代表了倾向于“抑冰优先”的方案,虽然将结冰量降至极低的 0.250 mm^3 ,但这主要是通过牺牲大量的冷启动持续时间(仅60.41 s)换来的,导致电池温升严重不足(8.81 K),难以满足冷启动的热管理要求。排名第一的点A则实现了多目标性能

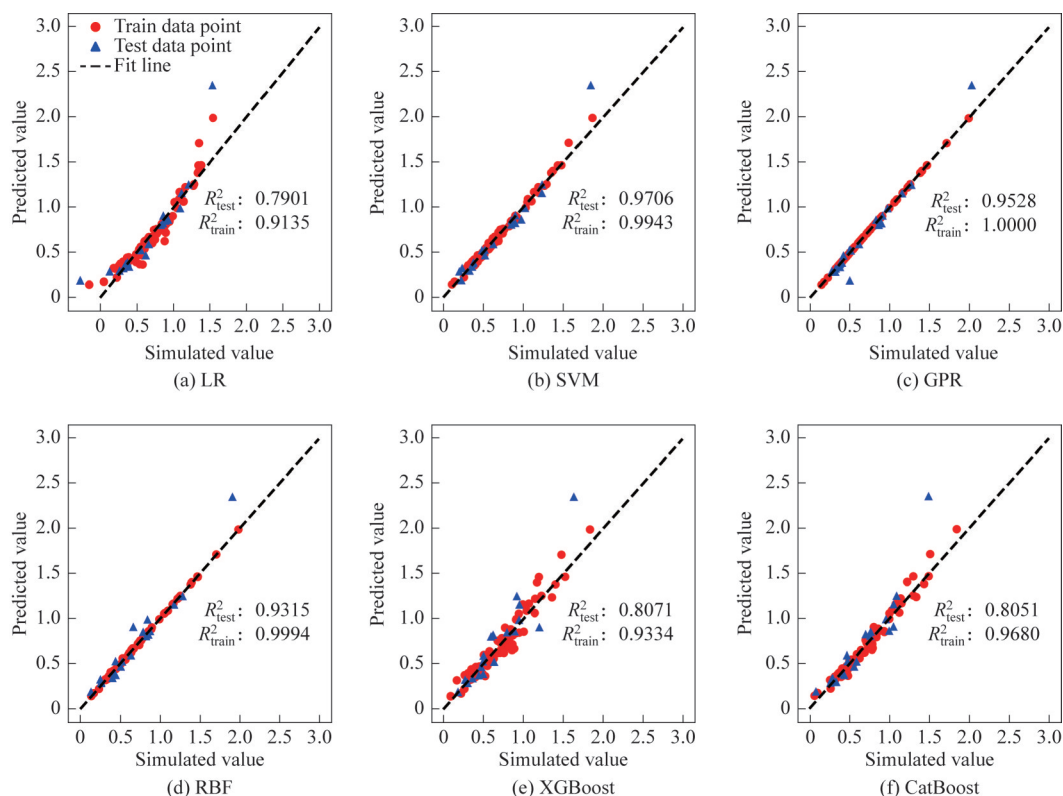


图5 不同代理模型对 $V_{\text{ice,final}}$ 在训练集和测试集上的预测结果对比

Fig.5 The predicted results of data-driven surrogate model for $V_{\text{ice,final}}$ on training set and test set using different ML methods

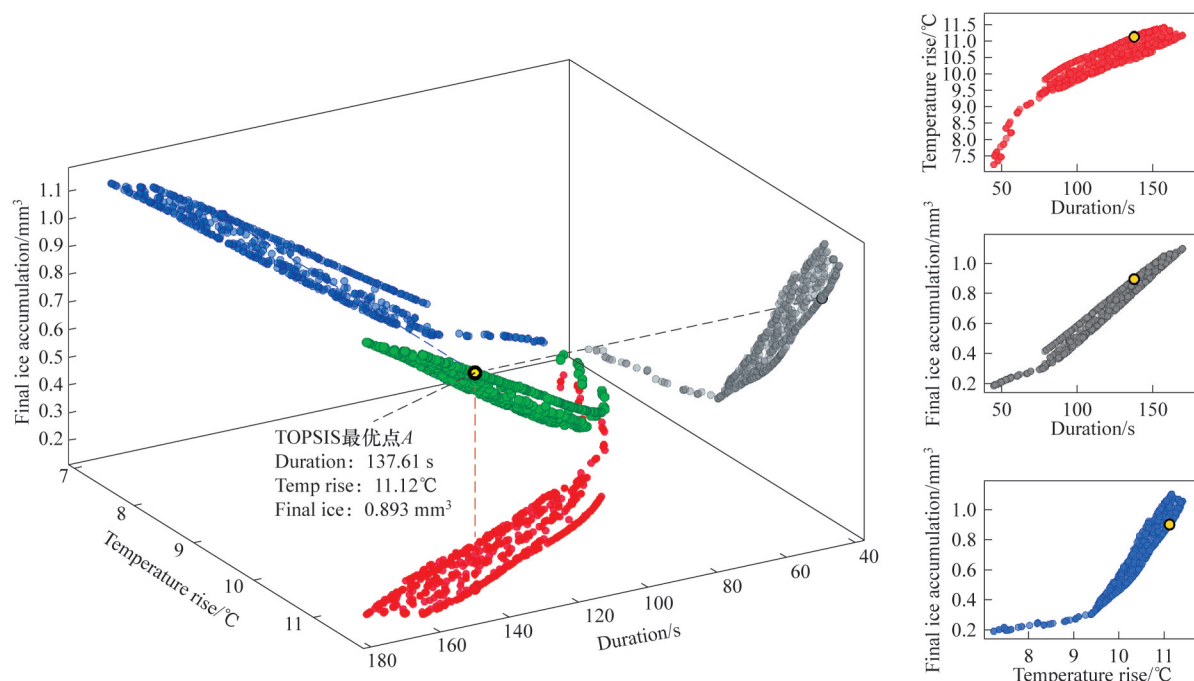


图6 PEMFC冷启动性能优化的帕累托前沿图

Fig.6 The distribution of Pareto-optimal solutions

的平衡。与点B相比,点A通过牺牲约15%的运行时间,成功换取了结冰量约18.5%的大幅下降,同时温升(11.12 K)仅低0.05 K。

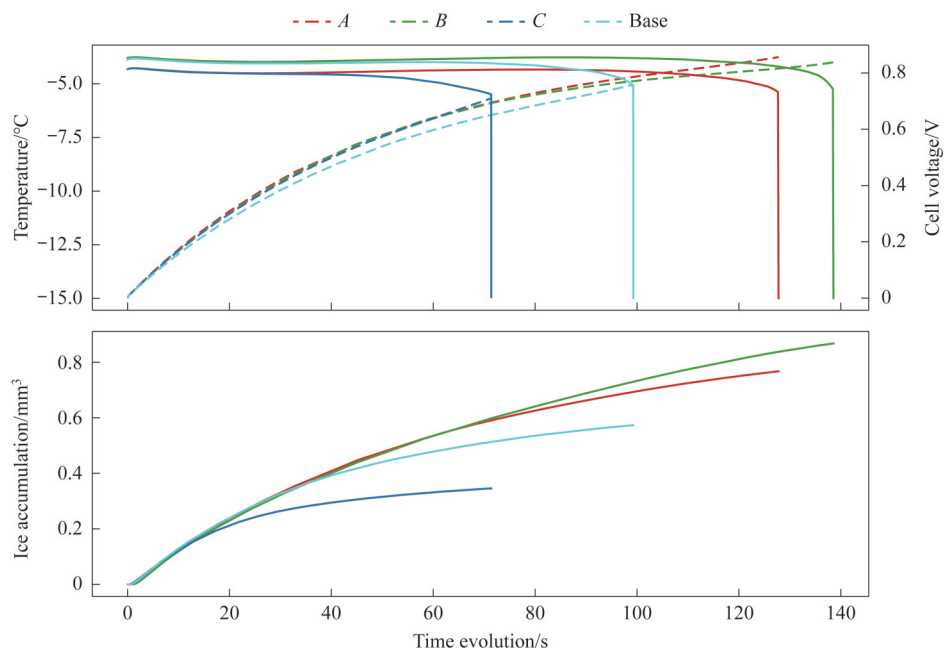
表3同时给出了高保真多物理场耦合模拟对代理模型优化结果的验证。代理模型在设计空间不同区域的预测精度存在差异,可归因于数据集标签值的偏态分布。对于最优设计点A,代理模型对冷启动持续时长的预测值与多物理场仿真结果的偏差为5.9%,说明在样本密集的中心区域代理模型精度较高。然而,对于极端点B和C,代理模型预测的冷启动持续时长与多物理场仿真结果结果的偏差为14.9%和34.4%。这主要是由于B和C位于参数空间的边界,且冷启动过程在极限条件下(如完全冰堵临界点)表现出高度非线性,外推难度增大。尽管存在绝对数值偏差,但重要的是,模型准确保持了性能排名的相对一致性,即正确识别了点B的时长优势和点C的抑冰优势,证明了该优化策略在定性筛选上的可靠性。

为了进一步分析优化结果的物理真实性,将冷启动过程的多物理场耦合仿真结果绘制为曲线,如图7所示。图7(a)表明基础CL配置在约100 s时失效;点C由于温升速率过慢,冷启动仅维持45 s即失败;点B虽然维持了>140 s的最长运行时间,但其最终结冰量较高,造成MEA不可逆损伤风险。相比之

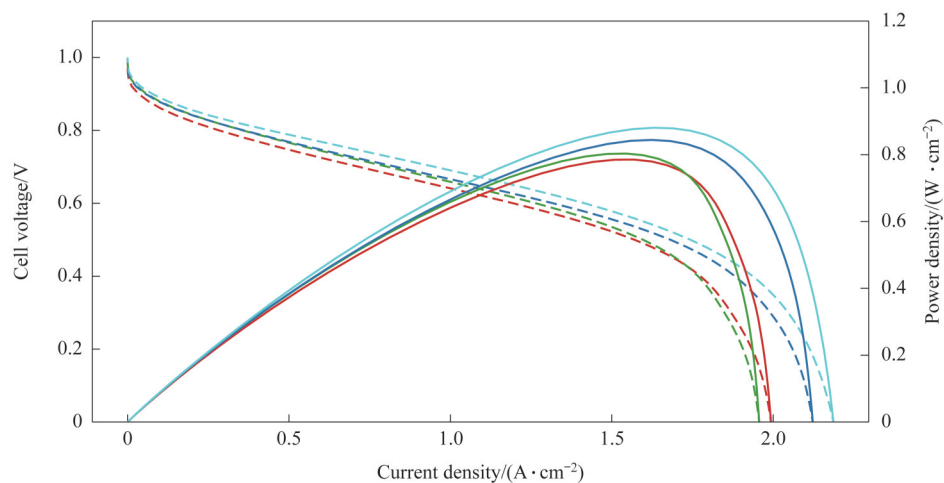
下,最优设计点A成功将启动时间延长至约130 s,较Base提升约30%,且在失效前保持了较高的电压平台,证明优化后的MEA有效提升了电池的低温耐受性。比较点A和点B的结冰曲线可知,点A的结冰速率在启动中后期明显低于点B,说明点A的结构参数更有效地平衡了冷启动过程中“锁水产热”与“防止堵塞”之间的关系。

图7(b)评估了针对冷启动的CL配置优化对其常温性能的影响。观察常规工况的极化曲线发现,A、B、C在高电流密度区域($>1.5 \text{ A} \cdot \text{cm}^{-2}$)的性能均低于基础CL配置。从物理机理分析,这是因为提升冷启动性能需要扩大CL储水能力,点A、B采用了较低的阴极Pt质量分数($\omega_{\text{Pt,c}} < 0.2$)和较高的离聚物含量($\text{I/C}_c = 1.2$)。在孔隙率为0.5左右的情况下,这种组合要求显著增加阴极催化层的厚度,在常温、大电流工况下会增加延长氧气的扩散路径,增加气相传输阻力,加剧浓差极化^[43-45],从而导致电池的峰值功率和极限电流密度下降。

CL配置A优异的冷启动表现与其常温峰值功率的劣势揭示了仅针对单一冷启动场景进行CL配置优化的局限性。在实际应用中,燃料电池系统不仅需要具备极端的低温启动能力,更需要保证在常规行驶工况下的高功率输出。因此,有必要将常温性能指标直接纳入多目标优化体系中。



(a) 冷启动过程中的电压、温度及积冰量动态演变



(b) 稳态极化曲线与功率密度曲线

图7 冷启动优化催化层与基础配置(Base)性能的多物理场耦合模拟对比

Fig.7 Performance comparison between the optimized and baseline catalyst layers using multi-physics simulation

2.3.2 兼顾 PEMFC 冷启动性能和常温性能优化

2.3.2.1 PEMFC 常温性能预测代理模型建立 为得到能快速预测 PEMFC 常温性能(最大功率密度 $P_{\max}$ 和极限电流密度 I_{pmax})的代理模型,参考前文对冷启动代理模型的分析可知,两类核方法在对高度非线性对应关系的拟合能力在所有尝试过的模型中存在明显优势。为了兼顾计算效率与建模精度,这里采用 LR 模型作为基准,并重点选取支持向量机与高斯过程回归作为核方法的典型代表进行建模。其中 LR 用于评估数据的线性特征,而 SVM 和 GPR 则凭借其强大的核技巧捕捉输入特征与常温性能指标间的复杂映射,从而确保后续多目标优化

过程中适应度评估的准确性与鲁棒性。这些模型对电池常温性能的预测效果如表4所示,从表可以看出,SVM模型在测试集上的 R^2 和 MAPE 的均值表现均为最优,因此挑选 SVM 模型作为后续分析中预测电池常温性能的代理模型。

2.3.2.2 PEMFC 冷启动与常温性能协同优化 将所求得预测冷启动性能和常温性能的最优代理模型耦合进前文所述的 NSGA-III 优化流程中,得到了包含五维目标值的 Pareto 解集(含解 330 个)。为了直观阅读这一高维 Pareto 解集的拓扑规律,采用全组合投影分析法,将 5 维解集投影到三维子空间中,共产生 10 组不同的三维散点图,多视角地重构各目

表3 针对多目标的最佳CL性质参数与冷启动性能

Table 3 Multiple objectives optimization results

CL配置		A	B	C	Base
阳极催化层	$m_{\text{Pt,a}}/(\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2})$	0.1	0.1	0.1	0.1
	$\omega_{\text{Pt,a}}$	0.236	0.180	0.261	0.2
	I/C_{a}	0.4	0.4	0.849	0.849
	Eps_{a}	0.5	0.3	0.3	0.3
阴极催化层	$m_{\text{Pt,c}}/(\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2})$	0.187	0.1	0.151	0.151
	$\omega_{\text{Pt,c}}$	0.191	0.105	0.308	0.308
	I/C_{c}	1.2	1.2	1.2	1.2
	Eps_{c}	0.5	0.5	0.5	0.5
代理模型 预测性能	$\tau_{\text{final}}/\text{s}$	137.61	161.65	60.41	—
	$\Delta T_{\text{final}}/^{\circ}\text{C}$	11.12	11.17	8.81	—
	$V_{\text{ice,final}}/\text{mm}^3$	0.89	0.95	0.25	—
多物理场耦合仿真验证性能	$\tau_{\text{final}}/\text{s}$	129.50	140.50	44.64	99.28
	$\Delta T_{\text{final}}/^{\circ}\text{C}$	10.97	11.30	7.28	9.95
	$V_{\text{ice,final}}/\text{mm}^3$	0.87	0.95	0.38	0.62

表4 不同代理模型对PEMFC常温性能的预测能力

Table 4 Comparison of data-driven models for PEMFCs in normal ambient temperature

指标	模型	MSE		MAPE		R^2	
		训练集	测试集	训练集	测试集	训练集	测试集
P_{max}	LR	0.00132	0.0023	0.0316	0.0425	0.8464	0.6718
	GPR	0	0.0007	0	0.0209	1	0.8956
	SVM	3.7×10^{-5}	0.0005	0.0021	0.02193	0.9956	0.9225
I_{pmax}	LR	0.0060	0.0099	0.0357	0.0485	0.8523	0.6493
	GPR	0	0.0051	0	0.0264	1	0.8180
	SVM	0.0004	0.0026	0.0042	0.0245	0.9913	0.9070

标间的耦合关系。特别标记各子空间坐标轴对应的单项性能极值点A、B、C、D、E,以勾勒出Pareto前沿的性能边界。

图8展示了最具代表性的4张三维散点子图,表现出PEMFC常温性能和冷启动性能间复杂的依赖与竞争关系。由图8(a)可见,各个非支配解在性能指标 τ_{final} 和 ΔT_{final} 上的变化趋势同步,而指标 $V_{\text{ice,final}}$ 与二者的变化趋势接近严格的负相关。这再一次说明由于PEMFC冷启动过程中的产水、产热机制,无法依靠调节CL性质来完全消除冷启动对电池膜结构造成损伤的风险。而观察图8(b)~(c)可以发现,非支配解的常温性能指标和冷启动指标 τ_{final} 和 ΔT_{final} 相互矛盾,表明在常温下高效的CL在低温环境下具有的脆弱性。 P_{max} 、 I_{pmax} 和 τ_{final} 、 ΔT_{final} 间的协同优化存在“甜区”,当非支配样本的某一指标趋优时,其他与之矛盾的指标在这些区域内的劣化程度远小于区域外。例如,在图8(b)中点A右上方区域,

样本的 P_{max} 值上升时, τ_{final} 和 ΔT_{final} 的下降速率显著低于区域外的点。进一步定量识别这一兼顾冷启动与常温性能的‘优化甜区’,设定了双重筛选阈值:冷启动持续时间 τ_{final} 大于100 s且常温最大功率密度 P_{max} 大于 $0.90 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。对落入该阈值范围内的非支配解(共65个)进行结构参数与对应的阈值性能指标的特征分析发现,处于该区域内的点的阴极催化层孔隙率表现出显著的高值倾向(主要集中在0.48~0.50区间)。这表明,构建高孔隙率的传输通道是缓解冷启动‘冰堵’与常温‘水淹/极化’这一矛盾的关键物理途径。而Pt载量与I/C比在甜区内则呈现出较宽的分布范围,意味着在满足高孔隙率的前提下,该框架为设计人员提供了灵活权衡成本与质子传导性的设计自由度。

为了从Pareto非支配解集中确定最终的CL配置方案,在这里同样使用如前文设置的等权值TOPSIS方法挑选出得分最高的点F,其与非支配解

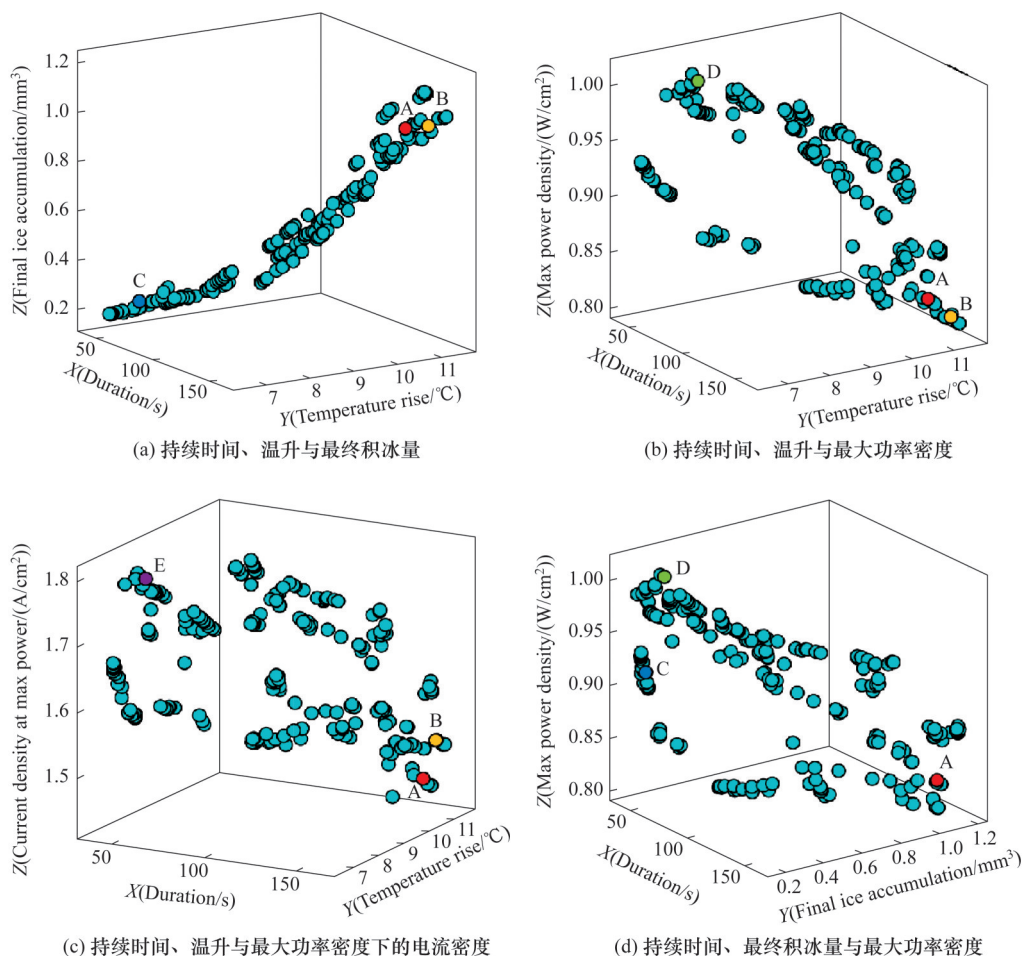


图 8 基于 NSGA-III 优化的五维 Pareto 前沿的三维投影图

Fig.8 Three-dimensional projections of the five-dimensional Pareto front obtained from NSGA-III optimization

集中各项指标的极值点 A 、 B 、 C 、 D 、 E 的预测性能及 CL 参数如表 5 所示。结合表中数据,在预测模型看来,取得极端的冷启动性能并不单纯依赖催化层内活性点数量(即铂载量 $m_{\text{Pt,a,c}}$)的提升。对比侧重冷启动的极值点 B 与平衡点 F ,点 F 具有较高的阴极铂载量,但其冷启动持续时间(100.95 s)却显著低于点 B (140.8 s)。这说明在极端的环境温度下,催化层的“孔隙储冰容积”往往比“电化学活性”更为关键。点 B 虽然铂载量低,但其引入的大量碳载体显著增加了电极厚度与总孔隙体积,为积冰提供了充裕的空间;而点 F 则采用了高铂载量与适中厚度的组合,旨在优先确保常温下的低传质阻力与高功率输出。同时,相较点 E ,点 F 在常温性能指标 P_{max} 和 I_{pmax} 上小幅度下降(-3.7%和-1.9%),冷启动持续时间和最终温升大幅增加了 111.7%和 33.3%,又与前文关于“优化甜区”的观察相符。

将 A ~ F 对应的 CL 性质代入高保真多物理场耦合模型验证,结果如表 6 所示。多物理场仿真结果

与代理模型的预测误差在催化层结构参数的设计空间内呈现出一定程度上的非均匀分布特征。位于中心区域的点 F 的模型预测精度在所有性能指标上都较高(最高为 4.2%),而位于参数空间边缘处的点 A 和点 B 模型预测的冷启动时间的预测误差则相对较大(分别为 13.1%和 11.4%),此外点 E 的最终积冰量预测误差达到 19.3%。这种“中心低、边界高”的误差分布主要归因于统计学习模型在样本覆盖相对稀疏的边界区域泛化能力的衰减;同时,对于积冰量等具有时间积分性质的指标,电流密度的微小瞬时偏差在长时间积分下也会产生一定的累积效应。尽管存在上述绝对数值偏差,但验证结果证实,代理模型准确捕捉了各设计点之间的相对性能排序与物理响应趋势。例如,在 CFD 验证结果中,极值点 A 的冷启动持续时间(139.3 s)依然显著优于侧重常温性能的点 D (58.07 s),验证了优化算法所筛选出的性能优势是物理真实且显著的。本研究采用了“代理模型初筛 + CFD 高保真验证”的

表5 非支配的单目标极值点A、B、C、D、E与平衡点F的预测性能与CL性质参数
Table 5 The Pareto-optimal CL property parameters and cold-star both normal performance

性能指标		CL配置					
		A	B	C	D	E	F
阳极催化层	$m_{Pt,a}/(\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2})$	0.101	0.1	0.198	0.207	0.1	0.1
	$\omega_{Pt,a}$	0.271	0.234	0.395	0.391	0.226	0.226
	I/C_a	0.4	0.4	0.4	0.912	0.865	0.861
	Eps_a	0.3	0.495	0.301	0.319	0.309	0.307
阴极催化层	$m_{Pt,c}/(\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2})$	0.118	0.1	0.195	0.236	0.217	0.5
	$\omega_{Pt,c}$	0.121	0.104	0.209	0.374	0.237	0.368
	I/C_c	1.2	1.2	0.4	1.199	0.4	0.4
	Eps_c	0.5	0.500	0.310	0.416	0.5	0.499
代理模型预测性能	τ_{final}/s	160.340	158.97	46.387	51.234	45.924	100.95
	$\Delta T_{final}/^{\circ}\text{C}$	10.784	11.413	6.957	7.744	7.608	9.9258
	$V_{ice,final}/\text{mm}^3$	1.066	1.060	0.192	0.263	0.218	0.635
	$P_{max}/(\text{W} \cdot \text{cm}^{-2})$	0.830	0.807	0.916	1.008	0.995	0.912
	$I_{pmax}/(\text{A} \cdot \text{cm}^{-2})$	1.458	1.510	1.616	1.738	1.794	1.639

表6 Pareto最优CL配置A、B、C、D、E、F的多物理场耦合仿真结果

Table 6 Multi-physics simulation results of the performance of Pareto-optimal points A, B, C, D, E, and F

优化点	冷启动指标			常温指标	
	τ_{final}	ΔT_{final}	$V_{ice,final}$	P_{max}	I_{pmax}
A	139.3	11.194	0.946	0.8045	1.575
B	140.8	11.461	0.943	0.7580	1.512
C	47.048	7.4428	0.244	0.886	1.621
D	58.074	8.2171	0.320	1.0014	1.721
E	47.693	7.4448	0.383	0.947	1.671
F	100.95	9.9258	0.635	0.912	1.639

策略,利用SVR构建参数空间与性能目标之间的梯度趋势,引导优化搜索进入高性能区域。因此,文中的最终性能评估及科学结论均以表6中经CFD校核后的计算值为准,从而确保了最终优化决策的可靠性,有效规避了代理模型局部预测偏差可能带来的误导。总体而言,该框架相较于高保真多物理场仿真,在保证一定的预测精度的情况下,其性能评估时间降低了 $10^6 \sim 10^8$ 个数量级,这大大增强了PEMFC的MEA优化工作的潜力与成本可行性。

图9(a)、(b)显示了表6中的各点和前文中提到的基础CL配置(基准点)的冷启动性能对比和常温性能对比的数值仿真结果,对比点F与基准点,点F的冷启动性能与基准点相当,温升和积冰变化曲线几

乎重合,输出电压曲线存续时间更长,且常温性能也略有提升(P_{max} 提升3.63%, I_{pmax} 提升1.21%)。这些优势说明了本研究所提出的PEMFC催化层结构优化方案的有效性。

3 结 论

本研究提出了一种数据驱动的质子交换膜燃料电池催化层结构多目标优化框架,旨在快速、低成本地分析PEMFC催化层的微观结构与电池冷启动性能间的构效关系,以期实现PEMFC在冷启动和常规工况下的高性能与适应能力。主要结论如下:

针对PEMFC微观结构与宏观性能之间的小样本、高维非线性映射关系,基于核方法的机器学习模型(SVM、GPR、RBFNN)表现显著优于线性模型与集成树模型(XGBoost、CatBoost)。其中,支持向量机(SVM)在冷启动与常温性能预测中均展现出最优的泛化能力(测试集 R^2 均值达0.968)与鲁棒性,有效替代了高计算成本的CFD仿真,将优化效率提升了数个数量级。

利用NSGA-III算法进行基于代理模型的PEMFC冷启动性能优化,发现冷启动持续时间与最终温升与MEA的最终积冰程度存在显著的正相关。经高精度多物理场耦合模型验证,发现仅针对冷启动优化的结构,如通过低孔隙率和高离聚物含量来增强“锁水产热”能力,会显著延长氧气扩散路径,导致常温大电流密度下的浓差极化加剧,从而牺牲

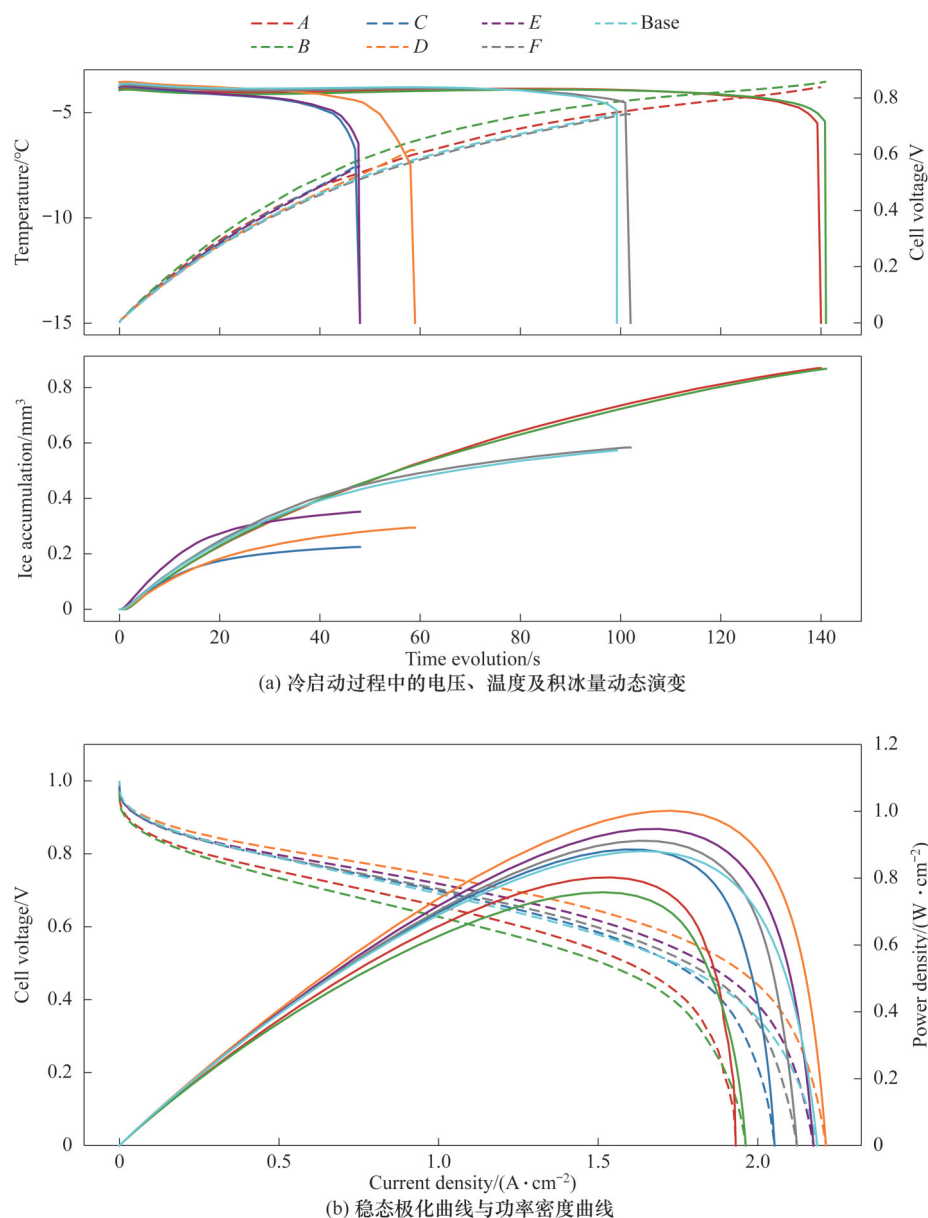


图9 兼顾常温与冷启动性能的优化催化层与基础配置的多物理场耦合模拟对比

Fig.9 Performance comparison between the baseline and catalyst layers optimized for both normal and cold-start operations using multi-physics simulation

电池的峰值功率。

构建了兼顾PEMFC常温性能和冷启动性能的优化框架,求解获得包含冷启动持续时间、温升、积冰量以及常温最大功率密度、极限电流密度的五维Pareto前沿。通过对该前沿的三维投影分析,数值性地揭示了PEMFC冷启动-常温性能间存在互斥关系,并定量的识别出了性能优化的“甜区”,即在特定参数区间内,可以用微小的冷启动性能代价换取显著的常温功率提升。

基于TOPSIS方法筛选出的最优CL设计成功实现了跨工况性能的平衡,与基准结构相比,不仅能

够保持同等水平的冷启动耐受性,同时常温最大功率密度提升3.63%、极限电流密度提升1.21%,证明本文提出的跨工况优化策略能够有效指导低铂、高性能且具备宽温域适应性的PEMFC催化层设计。

参考文献

- [1] Jiao K, Xuan J, Du Q, et al. Designing the next generation of proton-exchange membrane fuel cells[J]. Nature, 2021, **595** (7867): 361-369.
- [2] Yu Y S, Zheng W B, Li B, et al. A comprehensive review of cold start in proton-exchange membrane fuel cells: challenges,

- strategies, and prospects[J]. Applied Energy, 2025, **390**: 125846.
- [3] Mancino A N, Menale C, Vellucci F, et al. PEM fuel cell applications in road transport[J]. Energies, 2023, **16**(17): 6129.
- [4] Luo Y Q, Jiao K. Cold start of proton exchange membrane fuel cell[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2018, **64**: 29–61.
- [5] Choi Y, Kim M, Park J, et al. Proton exchange membrane fuel cell stack durability prediction using Arrhenius-based accelerated degradation model[J]. Applied Sciences, 2025, **15**(3): 1300.
- [6] 国家市场监督管理总局, 国家标准化管理委员会. 燃料电池发动机性能试验方法: GB/T 24554—2022[S]. 北京: 中国标准出版社, 2022.
- State Administration for Market Regulation, Standardization Administration of the People's Republic of China. Performance test methods for fuel cell system: GB/T 24554—2022[S]. Beijing: Standards Press of China, 2022.
- [7] Yang L, Fu K H, Jin X S, et al. Catalyst layer design with inhomogeneous distribution of platinum and ionomer optimal for proton exchange membrane fuel cell cold-start[J]. Chemical Engineering Science, 2022, **263**: 118132.
- [8] Xie X, Zhang G B, Zhou J X, et al. Experimental and theoretical analysis of ionomer/carbon ratio effect on PEM fuel cell cold start operation[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, **42** (17): 12521–12530.
- [9] Hou Y Z, Deng H, Pan F W, et al. Pore-scale investigation of catalyst layer ingredient and structure effect in proton exchange membrane fuel cell[J]. Applied Energy, 2019, **253**: 113561.
- [10] Oberholzer P, Boillat P, Siegrist R, et al. Cold-start of a PEFC visualized with high resolution dynamic in-plane neutron imaging[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2011, **159**(2): B235–B245.
- [11] Yoshimune W, Higuchi Y, Song F Z, et al. Neutron imaging for automotive polymer electrolyte fuel cells during rapid cold starts[J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2024, **26**(47): 29466–29474.
- [12] Yang L, Cao C X, Gan Q Q, et al. Revealing failure modes and effect of catalyst layer properties for PEM fuel cell cold start using an agglomerate model[J]. Applied Energy, 2022, **312**: 118792.
- [13] Yang L, Ma Z J, Gan Q Q, et al. Enhanced operational performance of PEM fuel cells with porous-carbon catalyst support: a multiscale modeling approach[J]. Energy Conversion and Management, 2023, **281**: 116858.
- [14] Liang J Q, Fan L H, Du Q, et al. Ice formation during PEM fuel cell cold start: acceptable or not?[J]. Advanced Science, 2023, **10** (24): 2302151.
- [15] Ding R, Wang R, Ding Y Q, et al. Designing AI-aided analysis and prediction models for nonprecious metal electrocatalyst-based proton-exchange membrane fuel cells[J]. Angewandte Chemie International Edition, 2020, **59**(43): 19175–19183.
- [16] Zhang C Z, Shao Y F, Deng S F, et al. Multi-objective optimization of operating parameters of proton exchange membrane fuel cells by coupling surrogate model and intelligent algorithm[J]. Fuel Cells, 2025, **25**(6): e70033.
- [17] Zhao J, Wei W, Zhao L, et al. Multi-objective optimization of PEMFC performance at different altitudes through integrated RSM, NSGA-II, EWM, and TOPSIS methodology[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2025, **177**: 151615.
- [18] Shi L, Du C, Zhou J L, et al. Optimization of fuel cell shutdown purge strategy based on machine learning: mechanism analysis and experimental verification[J]. Renewable Energy, 2025, **248**: 123165.
- [19] Yang S, Zhu J Q, Deng C W, et al. Machine learning and computational modeling informed cold-start design and optimization for proton exchange membrane fuel cells with cathode catalytic H_2 - O_2 reaction heating[J]. ENGINEERING Chemical Engineering, 2026, **20**(3): 19.
- [20] Wang B W, Xie B, Xuan J, et al. AI-based optimization of PEM fuel cell catalyst layers for maximum power density *via* data-driven surrogate modeling[J]. Energy Conversion and Management, 2020, **205**: 112460.
- [21] Li H W, Xu B S, Lu G L, et al. Multi-objective optimization of PEM fuel cell by coupled significant variables recognition, surrogate models and a multi-objective genetic algorithm[J]. Energy Conversion and Management, 2021, **236**: 114063.
- [22] Siddiqua S, Chang K, Naqvi S B, et al. AI-assisted proton exchange membrane (PEM) fuel cell performance prediction using CFD and data-driven surrogate models[J]. International Communications in Heat and Mass Transfer, 2024, **156**: 107616.
- [23] Yu X S, Zhang J Y, Zhang J, et al. Cold start optimization study of PEMFC low temperature coolant-assisted heating based on CAB-net and LO-WOA[J]. Hydrogen, 2026, **7**(1): 24.
- [24] Liu Z W, Mao X P, Kang Z H, et al. Multi-objective optimization of ice distribution uniformity and startup failure time for cold start of PEMFC catalyst layer based on CTnet and PSO-GA[J]. Fuel, 2024, **363**: 130922.
- [25] 付佳丽. 大气低频振荡对华北冬季强降温事件影响研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2021.
- Fu J L. Study on the influence of atmospheric low-frequency oscillation on severe cooling events in winter in North China[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science & Technology, 2021.
- [26] Mishler J, Wang Y, Lujan R, et al. An experimental study of polymer electrolyte fuel cell operation at sub-freezing temperatures[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2013, **160** (6): F514–F521.
- [27] Yakovlev Y V, Lobko Y V, Vorokhta M, et al. Ionomer content effect on charge and gas transport in the cathode catalyst layer of proton-exchange membrane fuel cells[J]. Journal of Power Sources, 2021, **490**: 229531.
- [28] COMSOL AB. COMSOL Multiphysics[CP/OL]. 5.6. Stockholm: COMSOL AB, 2020[2025-11-20]. <http://www.comsol.com/>.
- [29] Schenk O, Gärtner K. Solving unsymmetric sparse systems of linear equations with PARDISO[J]. Future Generation Computer Systems, 2004, **20**(3): 475–487.
- [30] Metropolis N, Rosenbluth A W, Rosenbluth M N, et al. Equation of state calculations by fast computing machines[J]. The Journal of Chemical Physics, 1953, **21**(6): 1087–1092.
- [31] McKay M D, Beckman R J, Conover W J. A comparison of three methods for selecting values of input variables in the analysis of output from a computer code[J]. Technometrics, 2000, **42**(1): 55–61.
- [32] Pedregosa F, Varoquaux G, Gramfort A, et al. Scikit-learn: machine learning in Python[J]. Journal of Machine Learning Research, 2011, **12**: 2825–2830.
- [33] Drucker H, Burges C J C, Kaufman L, et al. Support vector

- regression machines[C]//Proceedings of the 10th International Conference on Neural Information Processing Systems. New York: ACM, 1996: 155–161.
- [34] Rasmussen C E, Williams C K I. Gaussian Processes for Machine Learning[M]. Cambridge, MA: MIT Press, 2006.
- [35] Broomhead D S, Lowe D. Multivariable functional interpolation and adaptive networks[J]. *Complex Syst.*, 1988, **2**(3): 321–355.
- [36] Friedman J H. Greedy function approximation: a gradient boosting machine[J]. *The Annals of Statistics*, 2001, **29**(5): 1189–1232.
- [37] Chen T Q, Guestrin C. XGBoost: a scalable tree boosting system [C]//Proceedings of the 22nd ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining. New York: ACM, 2016: 785–794.
- [38] Prokhoronkova L, Gusev G, Vorobev A, et al. CatBoost: unbiased boosting with categorical features[C]//Advances in Neural Information Processing Systems31. Red Hook: Curran Associates. 2018: 6639–6649.
- [39] Deb K, Pratap A, Agarwal S, et al. A fast and elitist multiobjective genetic algorithm: NSGA- II [J]. *IEEE Transactions on Evolutionary Computation*, 2002, **6**(2): 182–197.
- [40] Das I, Dennis J E. Normal-boundary intersection: a new method for generating the Pareto surface in nonlinear multicriteria optimization problems[J]. *SIAM Journal on Optimization*, 1998, **8** (3): 631–657.
- [41] Geatpy Team. Geatpy: A High-performance Evolutionary Algorithm Toolkit for Python[CP/OL]. GitHub, 2023. <https://github.com/geatpy-dev/geatpy>.
- [42] Tzeng G H, Huang J J. Multiple Attribute Decision Making: Methods and Applications[M]. Boca Raton: CRC Press, 2011.
- [43] Sassin M B, Garsany Y, Atkinson R W, et al. Understanding the interplay between cathode catalyst layer porosity and thickness on transport limitations en route to high-performance PEMFCs[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2019, **44**(31): 16944–16955.
- [44] Ramaswamy N, Gu W B, Ziegelbauer J M, et al. Carbon support microstructure impact on high current density transport resistances in PEMFC cathode[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2020, **167**(6): 064515.
- [45] Huo S, Jiao K, Park J W. On the water transport behavior and phase transition mechanisms in cold start operation of PEM fuel cell[J]. *Applied Energy*, 2019, **233**: 776–788.