

直交表を用いたリチウムイオン電池性能の高効率な劣化予測モデル構築

Modeling of Efficient Lifetime Prediction for Lithium-ion Battery Employing Orthogonal Array

大道 馨¹

Kaoru OMICHI

合田 直弥¹

Naoya AIDA

加我 正¹

Tadashi KAGA

富永 由騎¹

Yuki TOMINAGA

西村 拓海¹

Takumi NISHIMURA

要 旨

ABSTRACT

電動化商品の開発初期において、性能劣化シミュレーションモデルによるリチウムイオン電池の耐久性予測は重要な技術である。本検討では、性能劣化予測モデルを構築するプロセスに、品質工学で用いられる直交表を適用し、低コストで、高効率なモデル構築手法を検討した。その結果、放置耐久テストに対してはL16、サイクル耐久テストに対してはL27の直交表を用いた実験計画を適用すると良いことが分かった。また、テスト結果のフィッティングにより、放置の劣化係数をSOCと温度の2次線形式＋交互作用項で表現し、サイクルの劣化係数をSOC、 Δ SOC、温度、充電電流、放電電流の1次線形式でモデル化することで、濃縮耐久試験結果を誤差1.3%と高精度にシミュレーションできることが分かった。本稿で論じるモデル構築手法は、従来手法である要因配置実験に必要なテスト量を58%削減しながら同等の精度が実現できており、実験効率の向上が見込まれることを確認した。

Estimation of lithium-ion battery durability by modeling that simulates performance degradation is an important technology during the initial phase of development of electrified products. For this study, a low-cost, highly efficient technique for creating a model was investigated by applying the orthogonal array used in quality engineering to the process of creating a performance degradation prediction model. As a result, it was found that for the storage durability test, it was productive to apply an experimental design that uses an L16 orthogonal array, whereas for the cycle durability test, it was productive to apply an experimental design that uses an L27 orthogonal array. It was also found that by fitting to the test results, when the storage degradation coefficient is modeled by expressing it with the state of charge and temperature in a quadratic linear equation together with an interaction term, and the cycle degradation coefficient is modeled by expressing it with the state of charge, window of operating state of charge, temperature, charge current, and discharge current in a first-order linear equation, then it was possible to simulate the results of accelerated durability testing highly accurately with a deviation of 1.3%. The method of modeling discussed in this paper reduced the amount of testing necessary in the conventional, factorial experiment method by 58% while realizing an equivalent level of accuracy, confirming that enhancement of experiment efficiency can be expected.

1. まえがき

リチウムイオン電池 (LiB) は高いエネルギー密度と出力密度を備えているため、小型の電子機器のみならず、二輪や四輪、航空機といった大型のモビリティに対しても広く利用されつつある⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。Hybrid Electric Vehicle (HEV) や Battery Electric Vehicle (BEV) などの電動車用 LiB には10年以上の長期間にわたる耐久性が求められるうえ

に、様々な地域や使い方を考慮しなければならない。そのため、性能劣化シミュレーションモデル (以下、劣化予測モデル) を用いた予測を通じて、開発初期に耐久性が開発目標を満たしていることを確認する必要がある^{(5), (6)}。LiBの劣化速度は、放置される電池の温度や充電状態 (State of Charge: SOC)、充電中の電流値や放電中の電流値、SOCの変化の大きさなどに依存する。そのため、電動車の使われる環境、使われ方に応じて、電池の劣化速度が変化する。

¹ 先進パワーユニット・エネルギー研究所

E-mail: Kaoru_Omichi@jp.honda

一般的に、気温が高い地域で、頻繁に運転をし、急な加減速を繰り返すユーザーの電動車の電池は、気温が低い地域で、運転の頻度が少なく、加減速が緩やかなユーザーの電池に比べて劣化が早い。劣化予測モデルでは、そのような様々な電動車の使われ方に合わせて劣化速度を割り出し、単位時間当たりの劣化量を累積計算する機能が求められる⁽⁷⁾。Honda ではこれまでに内部状態の予測を通じて性能劣化挙動を高精度に算出する Semi-Physical Model の構築をおこなってきた^{(8), (9)}。今後、更なる電動車開発の必要性増大に対応するため、精度の高い予測モデルを効率的に構築することが求められている。予測モデルの効率的な構築には開発目標を満足するテスト条件の設定や最適なモデル構築の手法の検討が必要である。

Fig. 1 に、Honda が実施している駐車 - ドライブ - 充電を繰り返した時の劣化挙動シミュレーションの流れを簡略的に示す。LiB の性能は容量維持率 (Capacity retention) で表され、使用するにつれて低下する。駐車 - ドライブ - 充電といった、個々の使用モードに相当する劣化速度を、あらかじめ耐久試験の学習データでフィッティングにより作成した劣化係数マップ (Degradation coefficient map) により算出する。求めた劣化速度とモード使用時間 ($\Delta time$) を乗算することで、各モード中の劣化量を算出する。それらを累積することで、劣化量の予測をおこなう。高い精度で劣化を予測するには、ユーザーの使い方を包含するように多くの条件数、且つ、長期間のテストをおこなう必要がある。ただし、車載電池の耐久テストは、充放電をするための充放電装置や恒温チャンバー、電気的特性をとるための評価装置、耐久テストを実施する人件費などが、長期にわたって発生するため、大きなコスト負担となる。そこで本検討では、LiB のモデル構築に直交表に基づく実験計画を適用し、テスト数を減らして、精度の高いモデル構築手法を実現する。

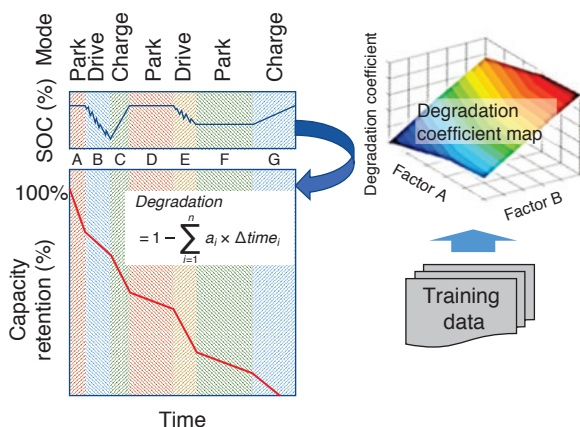


Fig. 1 Concept of calculating performance degradation

2. 現状課題と提案

これまで Honda では、車載用 LiB の劣化予測モデル構築のために、100 条件以上の負荷条件を半年以上の期間をかけて耐久試験を実施してきた。試験は、電池の負荷の観点で、放置モード (駐車) とサイクルモード (ドライブと充電) の二種類の試験をおこなってきた。試験条件の設定では、劣化因子ごとに 5 水準以上を設定し、一部要因配置実験 (Fractional factorial experiment) により設定してきた。例を Fig. 2 に示す。因子 (A から E) ごとに 5 水準設定し、注目因子以外を固定し (Fig. 2(b) の灰色セル)、注目因子のみを 1 水準ずつ変更することで要因効果の解析可能な実験データを得る方法である。メリットは、一因子の変化による効果を直接的に得られるため、データの可読性が高く、データを直感的に理解しやすい。例えば、Fig. 2(b) の 1 から 5 のテストデータを Fig. 2(c) の要因効果図にプロットすることで、容易に右肩上がり傾向を把握することができる。一方、デメリットは、それぞれのテスト水準が、固定された水準に集中し、データ全体で見たときに水準間に偏りが生じてしまう懸念がある。水準の偏りは、予測モデルの堅牢性の低下を招く。さらに、要因効果を導出する際、1 水準につき 1 データずつ抽出して各因子の依存性を把握するため、ばらつきやノイズに弱い。この解決のために固定する水準を変更して一部要因配置実験を、2 から 3 セット実施してきたが、その結果、耐久試験条件数が 65 から 100 条件と多くなり、試験コストが大きくなるという課題があった。

これらを解決するために本検討では直交計画を適用した。Fig. 3 に各因子 2 水準で作成した基本的な実験計画について示す。各因子全ての水準の組み合わせをテストする完全要因配置実験、要因効果を一部テストする一部要因配置実験、直交表に基づいて要因効果をテストする直交計画の三つを示す (Fig. 3)。

直交計画では、各因子において各水準が同じ 4 回ずつテ

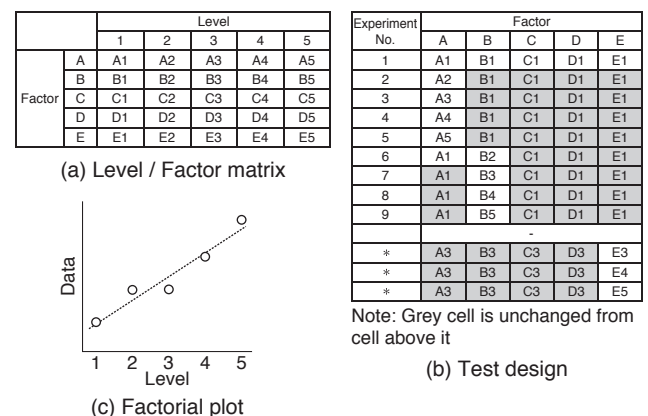


Fig. 2 Conventional testing method

スト条件に含まれており、且つ、因子の組み合わせが直交している。このため、各水準の要因特性を4回のテストの特性値の平均値として算出することができる。データを平均化して取り扱えることは、ばらつきの小さい要因効果解析につながる。また、各水準のバランスをとった組合せが可能となり、堅牢性が高められる。さらに、完全要因配置実験に比較してテスト条件数を大きく減らすことが可能である。

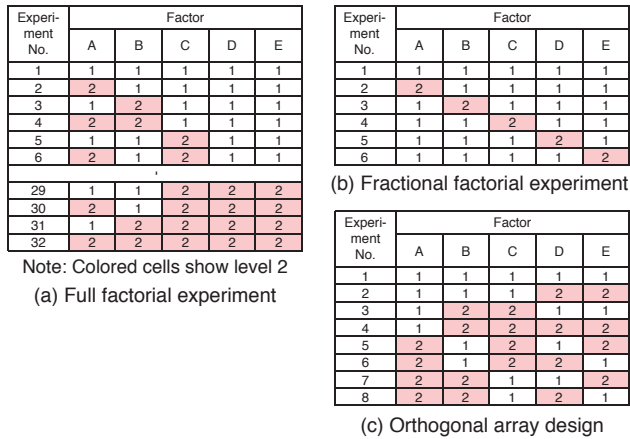


Fig. 3 Variations of basic designs of experiments

3. プロセス構築

効率的なモデル学習用データの取得には、モデル予測精度を極力落とすことなく、信頼性の高いデータを得ることが望ましい。ここで、モデル予測精度とは、学習用データと別の検証用データに対するかい離度合を指す。信頼性の高いデータとは、ノイズの影響がより小さいデータのことを指す。前述の直交表を用いて LiB の劣化予測モデル構築のためのデータ取得をおこなうには、以下のことに留意してデータ取得をおこなった。

3.1. 直交表サイズ最適化

直交表は L8 や L16 のように L に実験数を結合して表記される。直交表の種類としては L8, L9, L16, L18, L25, L27, L32, L36... と数多く存在するが、直交表のサイズを決めると、自動的に評価できる因子の数、水準数が制限される。例えば L9 の直交表ならば3水準の因子を最大四つまで評価可能となる。因子間に交互作用が見られる場合は評価できる因子数はさらに減少する。このような制約の中で、評価すべき因子と、評価すべき水準数を考慮して直交表を選択する必要がある。LiB の使用モードは放置とサイクルの2種類に大別される。それぞれの負荷の大きさを決める因子は、放置モードについては温度と SOC の

2 因子、サイクルモードについては温度、SOC、 Δ SOC、充電電流 (I-charge)、放電電流 (I-discharge) の 5 因子によって負荷が決まる (Fig. 4)⁽⁹⁾。水準数は、各因子に対する特性値の線形性を考慮して決める必要がある。要因効果が線形であるならば2水準のテスト結果から直線近似可能であるが、非線形の場合は最低3水準以上を設定し、結果を応答曲面法によりモデル化する必要がある。本検討では、車載用 LiB の耐久テスト結果分析から最適な直交表を設定した。

3.2. 水準数検討

水準設定時には、テストの実現性と、水準外挿リスクの二つを考慮する必要がある。直交表による実験計画では、不完全な試験やデータ欠損が生じるとデータ全体の信頼性が損なわれるため、実現可能なテスト水準を設定する必要がある。複数因子の使用限界値で条件設定されたテストは、テスト実現不可能になることがあるため、避けるようにした。ただし、水準設定範囲が使用範囲に比べて著しく狭い場合、水準設定範囲外の劣化係数を外挿することで算出する必要があるため、予測誤差を増加させる原因となる。従って、テスト遂行可能な範囲で、因子間でバランスを取りながら水準設定範囲が最大となるように設定した。

3.3. モデル式構築

モデル式は、最も学習データを良く反映でき、学習データとは別の検証データに対して精度良く予測できるモデル式を選択する必要がある。候補となるモデルの立式には、項数や次数をコントロールし、複雑度合の異なる複数のモデルを準備した。

3.4. モデル式選択

モデル式を選択する際には、学習データに対する決定係数 R^2 と、検証データに対するシミュレーション誤差から決定する必要がある。次数や係数が大きく複雑なモデル式

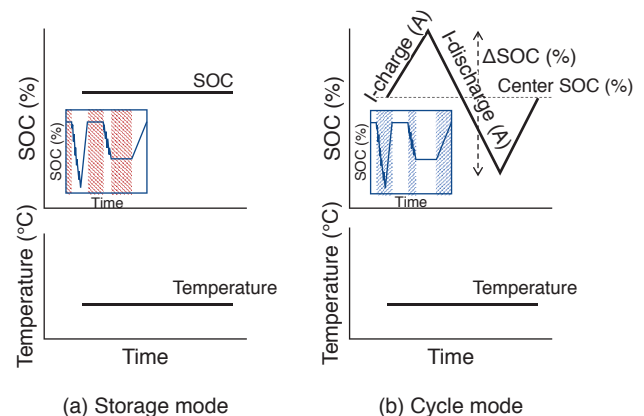


Fig. 4 Factors of storage and cycle modes

は学習データに対してよくフィットするが、学習データ以外の条件、例えば検証条件に対しては精度が低下する過学習という状態になる場合がある。そのため、LiBの劣化特性に基づいて、複雑度が異なる複数のモデル式を立案し、その中から、決定係数とシミュレーション誤差を指標にして最も精度が高いモデル式を選択した。

4. プロセス検討結果

LiBの劣化予測モデル構築に適した手法を検討するために、多数の条件で耐久テストをおこなった試験結果を解析した。試験には、5 Ahクラスのハイブリッド用LiBを供試体として用いた。耐久試験は、要因配置実験にて放置耐久テストとサイクル耐久テストを併せて95条件を6か月間実施した。各条件における劣化速度の算出は、LiBの耐久挙動を表す一般的なモデル式(1)⁽¹⁰⁾へ、最小二乗法でモデル式のパラメータを同定した。

$$\text{Capacity retention} = a \times \text{Time}^{0.5} + 1 \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \text{Degradation coefficient} \\ &= a_{11} \times \text{SOC}^2 + a_1 \times \text{SOC} \\ &+ a_{22} \times \text{Temperature}^2 \\ &+ a_2 \times \text{Temperature} \\ &+ a_{12} \times \text{SOC} \times \text{Temperature} \\ &+ a_0 \end{aligned} \quad (2)$$

4.1. 直交表選択

各テスト結果から算出された劣化係数 a を各因子に対し

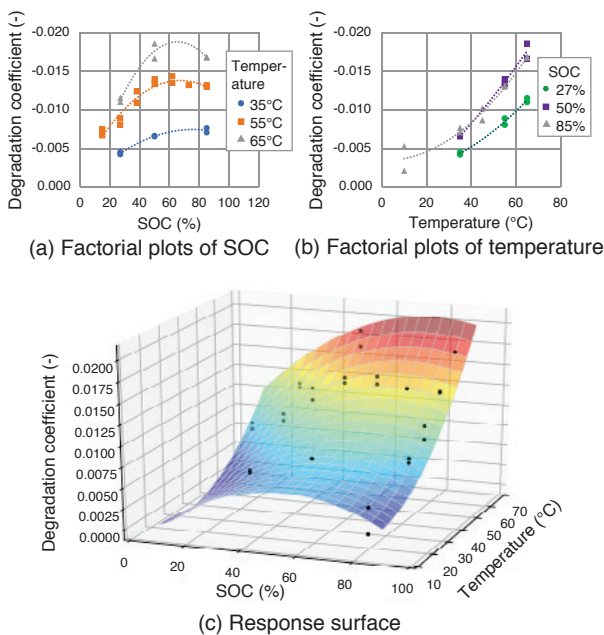


Fig. 5 Factorial plots and response surface of two variables in storage mode

てプロットした要因効果図を Fig. 5(a), (b) に示す。また、2次のモデル式(2)に基づいて得られた応答曲面を Fig. 5(c) に示す。放置耐久テストではSOC依存性、温度依存性についてそれぞれ非線形性を示していることから、3水準以上が選択できる直交表を選択する必要があることが分かった。また、SOC依存性の傾きが温度によって異なることから、SOCと温度の間に交互作用があることが推察される。これらの結果から2因子を3水準以上で、且つ、交互作用が評価可能な直交表として、3水準系のL9直交表、または2水準系直交表を4水準に合成したL16を用いることがよいことが分かった。

サイクル耐久テストの要因効果解析結果を Fig. 6 に示す。五つの因子に対して右肩上がりの依存性が見られており、五つのうち、三つの因子である Temperature, Δ SOC, I-charge に対して非線形な挙動が確認された。また、SOC以外の四つの要因効果について、異なるSOCにおける要因効果を評価したところ、SOCによって異なる傾きが確認された。このことは、各要因効果に交互作用があると判断できる。これらのことより、3水準以上の因子分析が可能で、最大4種類の交互作用が評価可能なL27がサイクル耐久テストには適当であることがわかった。放置耐久テスト(L16)とサイクル耐久テスト(L27)に必要な合計のテスト数は16+27=43条件となる。

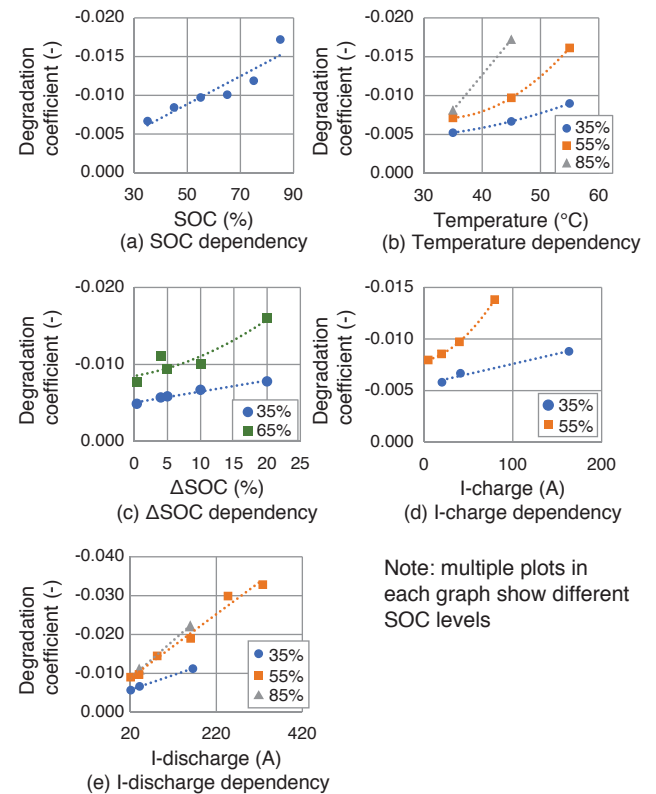


Fig. 6 Factorial plots of five factors in cycle patterns

4.2. 水準選択

各因子の水準を設定するにあたり、完全独立である因子と、非独立である因子に分けて考える必要がある。放置耐久テストにおける因子、SOC と温度は独立である。一方、サイクル耐久テストにおける I-charge と I-discharge、中心 SOC と Δ SOC は、お互いの数値の和が制約を受けるため、非独立となる。Fig. 7 にその制約を示す。I-discharge と I-charge の取りうる値の範囲は、電池仕様の上限電流値以下、且つ、セルの発熱が問題とならない実効電流値 (A-rms limit) 以下でテストする必要がある [Fig. 7(a)]。セルの発熱が大きいと、電池の温度制御が容易ではなくなる。また、安全にテストを実施するため、中心 SOC と Δ SOC の和の範囲が、過電圧を考慮しても過放電事象や Li 電析事象を起こさないように水準を設定した [Fig. 7(b)]。設定範囲外の因子数値を有する条件については、外挿算出によって劣化係数を求める必要が生じるため、全ての変数でバランスを取りながら最大値が選択できるように水準選択をおこなった。

4.3. モデル式立案

複数のモデル式を構築するにあたり、モデル式の複雑度を、要因効果の次数とモデル式の項の数で調整してモデル式を作成した。次数については 1 次線形と 2 次線形と二通り用意し、項の数については交互作用項の追加と分散分析による項数削減をおこない、Table 1 に示す 6 種類のモデル式を立案した。劣化因子に対して一次線形の要因効果を持つ線形モデル (i)(ii)(v)、単純線形には該当しない二次線形モデル (iii)(iv)(vi)、統計的に有意な項のみから構成される分散分析 (Analysis of Variance: ANOVA) モデル (v)(vi) を立式した。統計的に有意な項を選択するためには、直交表で実施したテスト結果に対して Table 2 に示すように分散分析をおこない、F 検定を通じて統計的に有意な項 (Table 2 中の * 記載因子) を抽出した。F 検定とは、二つの要因間の分散、すなわちばらつきに有意な差があるかどうかを判定する手法であり、分散分析においては、各要因効果による分散と誤差要因による分散を F 検定することで、有意な要因を抽出可能である。有意でないと判定された要因はモ

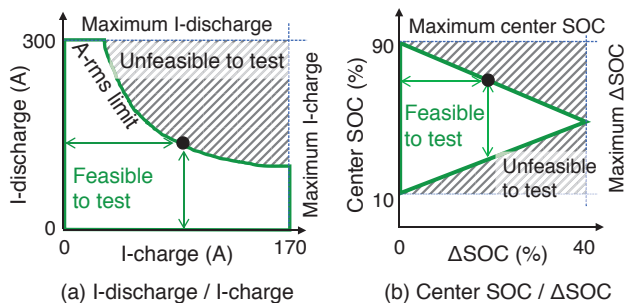


Fig. 7 Trade-off factors in cycle mode

Table 1 List of model formulas

No.	Model	Formula	Number of coefficients
(i)	Linear	$\sum_{j=1}^5 a_j \times X_j + a_0$	6
(ii)	Linear + interaction	$\sum_{j=1}^5 a_j \times X_j + \sum_{j=2}^5 a_{1,j} \times X_1 \times X_j + a_0$	10
(iii)	Quadratic	$\sum_{j=1}^5 a_{1,j} \times X_j^2 + \sum_{j=1}^5 a_j \times X_j + a_0$	11
(iv)	Quadratic + interaction	$\sum_{j=2}^5 a_{1,j} \times X_j^2 + \sum_{j=1}^5 a_j \times X_j + \sum_{j=2}^5 a_{1,j} \times X_1 \times X_j + a_0$	21
(v)	Linear + interaction (ANOVA)	$\sum_{j=1}^5 a_j \times X_j + a_{1,3} \times X_1 \times X_3 + a_0$	7
(vi)	Quadratic + interaction (ANOVA)	$\sum_{j=2}^5 a_{1,j} \times X_j^2 + \sum_{j=1}^5 a_j \times X_j + a_{1,3} \times X_1 \times X_3 + a_0$	12

X_1 : SOC; X_2 : Temperature; X_3 : Δ SOC; X_4 : I-charge; X_5 : I-discharge

Table 2 Analysis of variance of L27 cycle mode test

Factor	Degree of freedom	Sum of squares	Mean square	F-value	p-value	Statistical significance
Center SOC	2	7.5E-05	3.7E-05	4.7E+01	0.002	*
Temperature	2	1.2E-04	5.8E-05	7.3E+01	0.001	*
Δ SOC	2	2.1E-04	1.1E-04	1.3E+02	0.000	*
I-charge	2	1.1E-05	5.5E-06	7.0E+00	0.049	*
I-discharge	2	5.0E-05	2.5E-05	3.2E+01	0.004	*
Center SOC x I-charge	4	1.0E-06	2.5E-07	3.2E-01	0.853	
Center SOC x Δ SOC	4	1.8E-05	4.5E-06	5.6E+00	0.061	*
Center SOC x Temperature	4	2.8E-06	7.0E-07	8.9E-01	0.544	
Errors	4	3.2E-06	7.9E-07	-	-	
Total	26	4.9E-04	2.2E-05	-	-	

*Lower than the alpha level of 0.10

デルの精度を乱すため極力排除する。本検討では、五つの主要因と四つの交互作用のうち、六つの因子について統計的に有意であると判定された。

4.4. モデル式選択

Table 1 の 6 種類のモデル式の中から、学習データに対する決定係数 R^2 と検証データに対するシミュレーション誤差 (Root-Mean-Square Error: RMSE) によりモデル式を選択した。モデル式を選択には、学習用テスト結果とは異なる検証用テスト結果を用意し、その予測精度の高いものを選択した。検証用テストデータは極力複数準備し、総合的にモデル式を選択する必要がある。本検討では、学習用テスト条件が複数組み合わせられたシンプルパターンと複雑な実車走行パターンをテスト条件として設定し、学習用テストと同期間 (4 か月) 分の耐久試験をおこなったデータを検証用データとして用いた。各モデルの学習データに対する決定係数と、検証用データに対する誤差を Table 3 に示す。この中で、モデル (i) は学習データに対して決定係数 0.9 以上でフィッティングできており、検証用データに対して最も誤差が低く予測できているため、モデル (i) の線形

Table 3 Simulation results of six models

	Model	Number of coefficients	Coefficient of determination (R^2) vs training data	RMSE (%) vs test data		
				Simple pattern	Driving pattern	Average
(i)	Linear	6	0.92	2.2%	1.1%	1.6%
(ii)	Linear + interaction	10	0.95	6.4%	1.0%	3.7%
(iii)	Quadratic	11	0.93	3.3%	2.1%	2.7%
(iv)	Quadratic + interaction	15	0.97	6.7%	2.8%	4.7%
(v)	Linear + interaction (ANOVA)	7	0.94	3.0%	1.6%	2.3%
(vi)	Quadratic + interaction (ANOVA)	12	0.98	7.4%	1.4%	4.4%

モデルが良いと判断した。今回線形モデル (i) が最も精度が良かった理由は、(ii) から (vi) の他のモデルに比べると係数も少なく、シンプルなモデル式であるため、学習データとは異なるパターンに対してロバストに予測できたためと考えられる。それを裏打ちするデータとして、前述の分散分析結果 (Table 2) では、線形モデルに含まれる項 (SOC, Temperature, Δ SOC, I-charge, I-discharge) が全 8 項の中で p 値が低い。ここで p 値は、各要因と誤差要因の分散比と自由度を元に、分散の値同士に差がある確率を 0 から 1 までの確率で表した数値であり、0 に近いほど誤差要因に比べて大きな分散を持ち、有意であることを指すものである。モデル (i) は、統計的に有意な項で構成されることによってモデル式の予測精度が向上したと考察される。

5. 劣化予測結果

テスト数が 27 である直交表 L27 を用いてサイクルモードのデータ取得をおこない、最適化されたモデルにおいて、45℃ の高温での濃縮耐久試験から予測した結果を Fig. 8 に示す。濃縮耐久試験は実車走行時に電池セルに印加される波形を模擬した。その結果、予測結果と実測値の誤差は RMSE 1.3% であった。

一方、直交表ではなく、従来手法である一部要因配置実

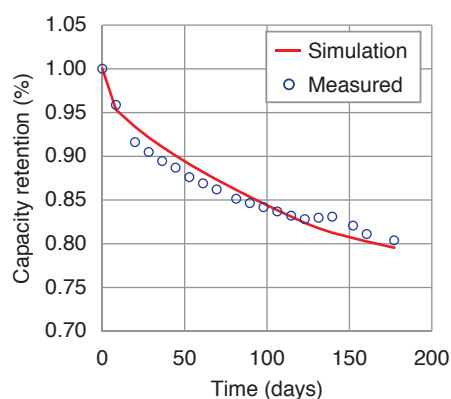


Fig. 8 Simulation result of driving pattern

験により 65 条件の耐久テストをおこない、モデル化に用いる条件数を 18 条件から 65 条件まで変化させてモデルを構築して濃縮耐久試験に対して予測したときの精度を、条件数に対してプロットしたものを Fig. 9 に示す。要因配置実験ではモデル化に用いる条件数の増大とともに誤差が減少し、予測精度が向上していることが分かる。65 条件用いたときの予測誤差は 1.4% であり、テスト数 27 の直交表を用いて構築したモデルの予測誤差は 1.3% であるため、両者はほぼ同値であることが確認された。直交計画は、従来手法の条件数を 58% 削減しながら、モデルの予測精度は同等であった。

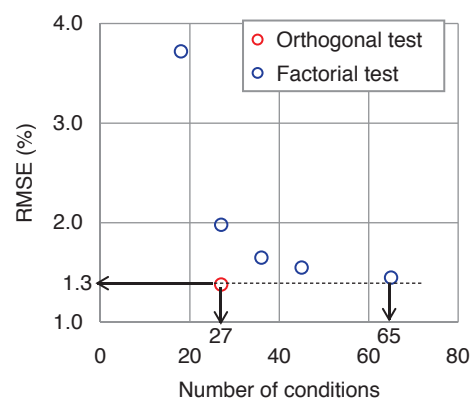


Fig. 9 RMSE of various number of conditions

6. 結言

LiB の性能劣化予測モデル構築において、直交表に基づく学習用データ取得プロセス、および、モデル構築手法の検討をおこなった結果、下記のことが分かった。

- (1) LiB の劣化モデル構築に必要な学習データ取得に適した直交表は L16 (放置耐久テスト)、L27 (サイクル耐久テスト) である。
- (2) 本検討で用いた電池の劣化モデル式は、放置劣化モデルは、2 次線形 + 交互作用、サイクル劣化モデルは 1 次線形モデルが最適である。
- (3) 直交表を用いた試験計画をおこなうことで、予測結果を同等精度 1.3% に保ちつつ、条件数を 58% 削減した。

参考文献

- (1) (独) 新エネルギー・産業技術総合開発機構: 二次電池技術開発ロードマップ 2013, (2013)
- (2) 富士経済: エネルギー・大型二次電池・材料の将来展望 2021- 電動自動車・車載電池分野編, (2021)
- (3) 経済産業省: 第 1 回蓄電池産業戦略検討官民協議会,

資料3 蓄電池産業の現状と課題について, (2021)

- (4) Dunn, B., Kamath, H., Tarascon, J.-M.: Electrical energy storage for the grid: a battery of choices, Science, Vol. 334, Issue 6058, p. 928-935, (2011)
- (5) Schmuck, R., Wagner, R., Hörpel, G., Placke, T., Winter, M.: Performance and cost of materials for lithium-based rechargeable automotive batteries, Nat. Energy, Vol. 3, Issue 4, p. 267-278, (2018)
- (6) Waag, W., Fleischer, C., Sauer, D. U.: Critical review of the methods for monitoring of lithium-ion batteries in electric and hybrid vehicles, J. Power Sources, Vol. 258, p. 321-339, (2014)
- (7) LoGrasso, J.: Meeting Customer Expectations: Life and Safety of Batteries in Hybrid & Electric Vehicles, Advanced Automotive Battery Conference, p. 2-5, (2011)
- (8) 加我正, 荒井洸, 堀満央, 富永由騎: 性能発現メカニズムに基づいたバッテリー性能の容量劣化推定モデル構築 第二報, 第61回電池討論会, 3A01, (2020)
- (9) 富永由騎: 電気性能発現メカニズムに基づいたリチウムイオン電池性能の劣化推定モデルの構築, 電気化学, 第89巻, 2号, p. 125-132, (2021)
- (10) 田尾洋平, 山手茂樹, 尾崎哲也, 稲益徳雄, 吉田浩明, 奥山良一: リチウムイオン二次電池用グラファイト負極上の SEI 被膜の成長過程, GS Yuasa Technical Report, 第10巻, 第2号, p. 8-15, (2013)

■ 著 者 ■



大 道 馨



加 我 正



西 村 拓 海



合 田 直 弥



富 永 由 騎