

リチウムイオン電池の耐久性能下限予測技術への 拡散過程モデルの活用

Technology for Lower Limit Prediction of Lithium-ion Batteries Performance after Degradation
Employing Diffusion Process Model

大 道 馨¹

Kaoru OMICHI

長 塚 豪 己²

Hideki NAGATSUKA

鈴 木 琴 音¹

Kotone SUZUKI

安 田 道 洋³

Michihiro YASUDA

要 旨

リチウムイオン電池を搭載した製品の耐久テスト後の性能を保証するため、ばらつきを含めた下限値を予測するモデルを構築した。劣化の予測には、電池の耐久性劣化トレンドに乗算したランダム効果と時間に比例してばらつきが拡大する拡散過程の2種類の確率変数をモデル式に含めた。パラメータ最適化には、マルコフ連鎖モンテカルロ法を援用した最尤法を用いた。その結果、従来12か月分の実測耐久データで推測していた劣化の下限値を4か月分のモデル学習で導出できるようになった。さらに、予測された耐久テスト後の代表性能値と耐久中の性能ばらつきの二つの情報が必要だった下限性能予測を、提案モデルを用いることにより、一つの情報でできることを示した。

ABSTRACT

A model for predicting lower limit performance including variation terms was constructed to help achieve performance after durability testing of products equipped with lithium-ion batteries. To predict degradation, the model formula includes two types of stochastic variables: random effects multiplied by the battery durability degradation trend term, and a diffusion process in which variation expands proportionally with time. Parameter optimization was conducted by the maximum likelihood method aided by the Markov Chain Monte Carlo method. As a result, the lower limit performance after degradation, which had conventionally been predicted based on 12 months of measured durability data, was successfully computed based on only four months of durability data. It was also demonstrated that prediction of lower limit performance, which previously required the two pieces of information of the predicted typical performance values after durability testing and performance variation during durability, could be achieved with just one piece of information by using the proposed model.

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有しており、昨今は小型電子機器から大型モビリティへも用途が拡大している⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾。Hybrid Electric VehicleやBattery Electric Vehicleなどの電動車用LiBには10年以上の長期間にわたり、多様な地域や用途を考

慮して耐久性を保証することが求められる⁽⁶⁾。様々な使い方での耐久性を検証するには、実機を用いて個別のテストをおこなうよりも、シミュレーションモデルを活用する方が効率的になる^{(7), (8)}。著者らは過去に、短期間で効率的に電池性能の劣化を予測できるモデルの構築をおこなった。その検討では、負荷に応じた電池の劣化速度をモデルに学習させ、累積した劣化量を加算して予測することで、

¹ 先進パワーユニット・エネルギー研究所

E-mail: kaoru_omichi@jp.honda

² 中央大学, 博士 (工学)

³ 株式会社テクノプロ テクノプロ・デザイン社

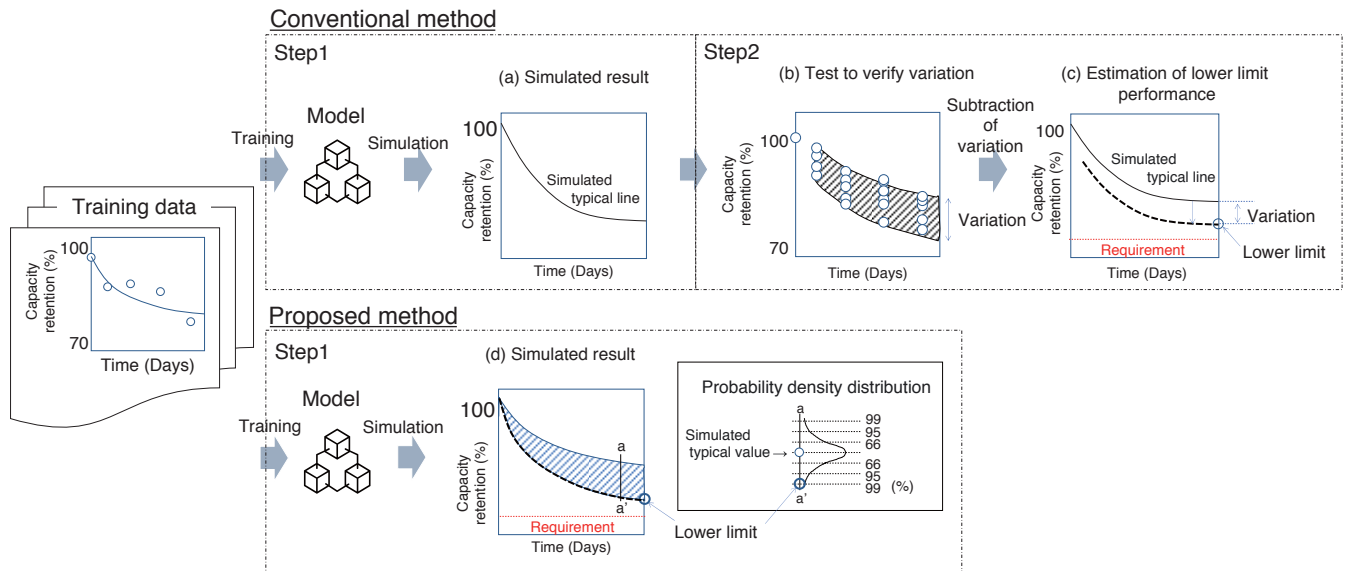


Fig. 1 Estimation of lower limit performance by conventional and proposed methods

非線形な劣化挙動を予測できることがわかっている⁽⁹⁾、⁽¹⁰⁾。ただし、予測できるのは劣化後の平均的な性能値のみであった。一方で、欧州バッテリー規則ではライフタイムにわたる最低性能値要件が定められており⁽⁶⁾、LiBの性能の下限値を開発段階で検証する必要がある。Fig. 1(a)のモデルによる予測値からFig. 1(b)のばらつき量をFig. 1(c)のように差し引くと下限値を推定することができる。すなわち、劣化予測モデルによる予測と、下限値の推定の2ステップによりおこなう。二つのステップでそれぞれ耐久テストが必要であるため、この手法はコストがかかる上に時間を要する。本検討では、上記課題を解決するためにFig. 1(d)に示すようなモデルを用いて1ステップで効率的におこなうことを目的とした。

この目的達成のためには、劣化予測モデル式そのものに耐久テスト後の性能ばらつきを適切に表現する項を導入する必要がある。本検討では、LiBの耐久テスト後の性能がばらつく要因に基づいて複数のランダム項を取り入れた劣化予測モデル式を採用する。この手法にはランダム項の導入に伴ってパラメータ数が増えるため、パラメータが局所最適に陥ることと、モデル学習に必要な耐久テスト期間が不明という課題があり、その解決を図った。

2. 下限値予測モデルの提案

2.1. 性能がばらつく要因考察

ばらつきを表現するランダム項を定めるため、耐久テスト後の電池残存容量を分析した。電池の種類と耐久テスト条件は単一とし、複数個数の電池に対して耐久テストを実施して、容量の経時変化を測定した。供試体には5 Ahクラスの円筒型電池を用いた。雰囲気温度 55℃、4.1 Vから 3.4

Vまでを充放電した際の16個の電池の劣化挙動をFig. 2に示す。各実線は容量の推移を、白抜きプロットは各計測時点の容量維持率の分散を示す。分散が時間と共に増大する傾向があることから、電池によって劣化速度に個体ばらつきが存在する。また、単一個体の電池であっても測定タイミングによって容量維持率が上下していることから経過時間によらない測定ばらつきが存在する。LiBの劣化挙動には以上二つのばらつきが存在する。

ばらついた性能を元にモデルを構築するため、モデルが持つパラメータも確率的なばらつきを内包するようになる。例として、25、40、55℃において、観測された劣化速度をFig. 3に示す。この劣化挙動を学習した劣化予測モデルの信頼度95%の信頼区間は、灰色でハッチングされた範囲になる。すなわち、ばらついたデータを学習したモデルが出力する結果もまた確率的なばらつきを含んでいる。これを以後、モデル誤差と表現する。

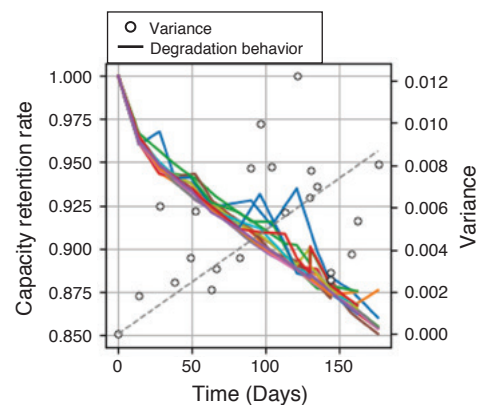


Fig. 2 Degradation behavior of LiB at same loading condition

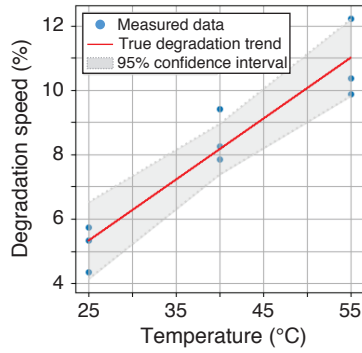


Fig. 3 Observed degradation speed and confidence interval

2.2. 下限値予測モデルの立式

LiB の耐久テスト中の測定データが持つ測定ばらつき、耐久性能のばらつき、モデル化の際のモデル誤差の三つを劣化予測モデル式へ反映させる。下限値予測に用いるモデルは、劣化の傾向を示す確定的なトレンド項と、ばらつく因子を表現するランダム項で構成する。トレンド項、並びにランダム項を、実際の現象に合うようにモデルを立式する。学習データ量が少なくても、外挿条件の場合にモデル誤差が過大とならないようにできるパラメトリックモデルとした。モデルの基本式を式 (1) に示す。

$$dX(t) = \mu(\eta(t), \theta_0)d\eta(t) \quad (1)$$

where

$$\eta(t) = t^b$$

ここで、 $X(t)$ は時刻 t における容量劣化率 (1 - 容量維持率 (%))、 θ_0 は劣化速度が持つパラメータ、 $\mu(t, \theta_0)$ はトレンド項 $\Lambda(t, \theta_0)$ の t に関する偏導関数 ($\mu(t, \theta_0) = \frac{\partial}{\partial t} \Lambda(t, \theta_0)$)、 $\eta(t)$ は時間 t の尺度を変換する関数⁽¹²⁾、 b は尺度変換係数である。

ばらつきを表すランダム項は、平均 0、分散 σ_ϵ^2 (平均、分散共に時間に対して一定) の正規分布に従う確率変数 ϵ とする (Table 1)。

時間と共に徐々に拡大する挙動を表現する耐久ばらつきについては、拡散過程を採用した^{(11), (12)}。Table 1 における $W(t)$ は標準ウィーナー過程、 σ は拡散係数である。

トレンド項に積算するばらつき項であるモデル誤差については、平均 μ_λ 、分散 σ_λ^2 (平均、分散共に時間に対して一定) の正規分布に従う確率変数 λ として、性能を表す式のトレンド項に積算する。なお、モデルにおいて確定変数を確率変数に置き換える目的で導入された変数はランダム効果と一般的に呼ばれる⁽¹³⁾。なお、以上の三つのランダム項はそれぞれ他のランダム項に対し独立であると仮定している。

上記のばらつき項の組み込み方の組合せに基づき、複数の候補モデルを Table 2 に示す。

本検討では、3 種類の誤差の有無の組み合わせより合

Table 1 Three types of degradation formulas with variation terms

Items	Independence of degradation trends	Time dependence of variation	Formula
Measurement variation	Yes	No	$X(t) = \Lambda(\eta(t), \theta_0) + \epsilon$ $\epsilon \sim N(0, \sigma_\epsilon^2)$
Interindividual variation	Yes	Yes	$dX(t) = \mu(\eta(t), \theta) d\eta(t) + \sigma_B dW(\eta(t))$ $W(\eta(t)) \sim N(0, \eta(t))$
Model variation	No	Yes	$dX(t) = \lambda \times \mu(\eta(t), \theta) d\eta(t)$ $\lambda \sim N(0, \sigma_\lambda^2)$

Table 2 Six types of model formulas with combinations of variation terms

Model No.	Measurement variation	Inter-individual variation	SIM variation	Model formula
M1	○			$X(t) = \Lambda(\eta(t), \theta_0) + \epsilon$
M2		○		$dX(t) = \mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t) + \sigma_B dW(\eta(t))$
M3		○	○	$dX(t) = \lambda \times \mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t) + \sigma_B dW(\eta(t))$
M4	○	○		$X(t) = Y(t) + \epsilon$ $dY(t) = \mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t) + \sigma_B dW(\eta(t))$
M5	○	○	○	$X(t) = Y(t) + \epsilon$ $dY(t) = \lambda \times \mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t) + \sigma_B dW(\eta(t))$
M6	○		○	$X(t) = Y(t) + \epsilon$ $dY(t) = \lambda \times \mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t)$

$$\eta(t) = t^b, t > 0, b > 0, \lambda \sim N(\mu_\lambda, \sigma_\lambda^2), \mu_\lambda > 0, \sigma_\lambda > 0, W(\eta(t)) \sim N(0, \eta(t)), \epsilon \sim N(0, \sigma_\epsilon^2), \sigma_\epsilon > 0$$

Table 3 List of trend model formulas

No.	Model	Formula	Number of coefficients
(i)	Linear	$\sum_{i=1}^5 a_i \times X_i + a_0$	6
(ii)	Linear + interaction	$\sum_{i=1}^5 a_i \times X_i + \sum_{1 \leq i < j \leq 5} a_{i,j} \times X_i \times X_j + a_0$	16
(iii)	Quadratic	$\sum_{i=1}^5 a_{i,i} \times X_i^2 + \sum_{i=1}^5 a_i \times X_i + a_0$	11
(iv)	Quadratic + interaction	$\sum_{i=2}^5 a_{i,i} \times X_i^2 + \sum_{i=1}^5 a_i \times X_i + \sum_{1 \leq i < j \leq 5} a_{i,j} \times X_i \times X_j + a_0$	21

$$X_1: SOC; X_2: Temperature; X_3: \Delta SOC; X_4: I\text{-charge}; X_5: I\text{-discharge}$$

計 $2^3 - 1 = 7$ 種類のモデル式を立式した。ただし、測定ばらつき、劣化ばらつきを含まずにモデル誤差のみ含むデータは存在しないため候補モデル式から除外し、M1 から M6 まで六つのモデルを検討した。なお、M1 は測定誤差だけが考慮されている従来モデルであり、これは最小二乗法を用いるモデルと同義である。

トレンド項は、劣化速度を表す変数 $a(\theta_0, t)$ を使って式 (2) のように表される。

$$\Lambda(\eta(t), \theta_0) = a(\theta_0, t) \times \eta(t) \quad (2)$$

$a(\theta_0, t)$ は負荷の変数 $SOC(t)$ 、 $Temperature(t)$ 、 $\Delta SOC(t)$ 、 $I\text{-charge}(t)$ 、 $I\text{-discharge}(t)$ とパラメータ ($a_0, a_1, a_2, \dots, b$) で構成される劣化速度を示す変数である。Table 3 に示すように、各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)、単純線形には該当しない二次線形モデル (iii) (iv)、要因間の交互作用項を有する交互作用モデル (ii) (iv) を立式した。B は電池の種類により固有の適値を用いる⁽¹⁰⁾。

3. パラメータ最適化プロセスの構築

3.1. パラメータ最適化手法

モデル式に含まれるトレンド項のパラメータ ($a_0, a_1, a_2, \dots, b$), ばらつき項のパラメータ ($\sigma_e, \sigma_B, \sigma_\lambda, \mu_i$) を実際のテストデータに基づいて最適化する. 非線形パラメータが含まれることから, 対数尤度関数 (Log-Likelihood: LL) を目的変数とした最尤法によりパラメータの推定をおこなった. ここで, 時刻 $t_{i,j}$ におけるセル i の性能値を表す確率過程を $X_i(t_{i,j})$ とすると, 提案モデル M2 から M6 の中でパラメータ数が最大となるモデル式の M5 の対数尤度関数は式 (3) で与えられる. 最適化計算において局所解に陥ることを避けるため, マルコフ連鎖モンテカルロ法 (MCMC) を援用して最尤推定値を求めた^{(14), (15)}. 具体的には, 分散を大きくとった正規分布を各パラメータの事前分布として設定した. MCMC 法には, パラメータ数が多いときにも有効に働くことで知られるハミルトニアンモンテカルロ法 (HMC) を採用し, 最大事後確率推定 (maximum a posteriori: MAP) をおこなうことで, 最尤推定値を求めた.

$$l(\theta) = -\frac{\sum_{i=1}^n m_i}{2} \ln(2\pi) - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \ln|\Sigma_i| - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n (\Delta X_i - \mu_\lambda \Delta \Lambda_i(\theta_0))^T \Sigma_i^{-1} (\Delta X_i - \mu_\lambda \Delta \Lambda_i(\theta_0)) \quad (3)$$

However,

$$\{\theta = (\theta_0, b, \mu_\lambda, \sigma_\lambda^2, \sigma_B^2, \sigma_e^2),$$

$$\mu_\lambda \in R,$$

$$\sigma_\lambda > 0,$$

$$\sigma_B^2 > 0,$$

$$\sigma_e^2 > 0,$$

$$\Sigma_i = \sigma_\lambda^2 \Delta \Lambda_i(\theta_0) \Delta \Lambda_i(\theta_0)^T + \Omega_i,$$

$$\Omega_i = \sigma_B^2 \times \text{diag}(\Delta \eta_i) + \sigma_e^2 F,$$

$$F = \begin{pmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ -1 & 2 & -1 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & -1 & 2 & -1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 2 & -1 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & -1 & 2 \end{pmatrix}$$

$$\Delta X = (\Delta X_1, \dots, \Delta X_n)^T,$$

$$\Delta X_i = (\Delta X_{i,1}, \dots, \Delta X_{i,m_i})^T,$$

$$\Delta X_{i,j} = (X_i(t_{i,j}) - X_i(t_{i,j-1})),$$

$X_i(t_{i,j})$ は, セル i の時刻 $t_{i,j}$ における劣化量

$$\Delta \Lambda_i(\theta_0) = (\Delta \Lambda_{i,1}(\theta_0), \dots, \Delta \Lambda_{i,m_i}(\theta_0))',$$

$$\Delta \Lambda_{i,j}(\theta_0) = a(\theta_0, t_{i,j}) \{ \eta(t_{i,j}) - \eta(t_{i,j-1}) \},$$

$a(\theta_0, t_{i,j})$ は, セル i の時刻 $t_{i,j}$ における劣化加速係数

$$\Delta \eta_i = (\Delta \eta_{i,1}, \dots, \Delta \eta_{i,m_i})',$$

$$\Delta \eta_{i,j} = \eta(t_{i,j}) - \eta(t_{i,j-1}) = t_{i,j}^b - t_{i,j-1}^b$$

$t_{i,j}$: セル i の j 番目に, 劣化量が観測された時刻. $1 \leq j \leq m_i, 1 \leq i \leq j$

3.2. モデル式の選び方

トレンド式, ばらつきモデル式を選択するには, 学習データに対する赤池情報量規準 (Akaike's Information Criterion: AIC) により決定する. AIC は学習データのみに過適合する事象を防ぎつつ, 最適なモデルが選択できる指標として一般的に用いられている. AIC は最適化の際に目的変数として用いた LL の最終値とモデル内のパラメータ数 (k) から式 (4) を用いて算出する.

$$AIC = -2LL + 2k \quad (4)$$

k: パラメータ数

3.3. 性能下限値の予測

$\Delta X_{i,1:m_i}$ が与えられた下での $\Delta X_{i,1:m_i+1}$ の分布が以下の式 (5) で得られる.

$$\Delta X_{i, m_i+1} | \Delta X_{i, 1:m_i} \sim N(\mu_{m_i+1|m_i}, \sigma_{m_i+1|m_i}^2), \quad (5)$$

However,

$$\begin{aligned} \{\mu_{m_i+1|m_i} &= \mu_\lambda \Delta \Lambda_{i, m_i+1}(\theta_0) + \omega'_{i,1} \Sigma_{i,1:m_i}^{-1} (\Delta X_{i,1:m_i} - \mu_\lambda \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0)) \\ \sigma_{m_i+1|m_i}^2 &= \sigma_{i, m_i+1}^2 - \omega'_{i,1} \Sigma_{i,1:m_i}^{-1} \omega_{i,1}, \\ \omega_i &= (0, \dots, 0, -\sigma_e^2)', \quad (m_i \text{ 次元ベクトル}), \\ \Sigma_{i,1:m_i} &= \sigma_\lambda^2 \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0) \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0)' + \Omega_{i,1:m_i}, \\ \Omega_{i,1:m_i} &= \sigma_B^2 \text{diag}(\Delta \eta_{i,1:m_i}) + \sigma_e^2 F_{obs}, \\ F_{obs} &= \begin{pmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ -1 & 2 & -1 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & -1 & 2 & -1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 2 & -1 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & -1 & 2 \end{pmatrix}, \\ &\quad (m_i \times m_i \text{ 行列}), \\ \Sigma_i^{-1} &= \Omega_{i,1:m_i}^{-1} - \frac{\sigma_\lambda^2}{1 + \sigma_\lambda^2 \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0)' \Omega_{i,1:m_i}^{-1} \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0)} \\ &\quad \times \Omega_{i,1:m_i}^{-1} \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0) \Delta \Lambda_{i,1:m_i}(\theta_0)' \Omega_{i,1:m_i}^{-1}, \\ \sigma_{i, m_i+1}^2 &= \sigma_\lambda^2 \Delta \Lambda_{i, m_i+1}(\theta_0)^2 + \sigma_B^2 \Delta \eta_{i, m_i+1} + 2\sigma_e^2 \} \end{aligned}$$

よって, 標準正規分布の上側 $\alpha\%$ 点を z_α とするとき, 個体番号 i のセルの, $\Delta X_{i,1:m_i}$ が与えられた下の, t_{i, m_i+1} 時点の劣化増分 $\Delta X_{i,j}$ の $100 \times (1 - \alpha)\%$ 信頼区間は, 式 (6) で与えられる.

$$[\hat{\mu}_{m_i+1|m_i} - \hat{\sigma}_{m_i+1|m_i} z_{\frac{\alpha}{2}}, \hat{\mu}_{m_i+1|m_i} + \hat{\sigma}_{m_i+1|m_i} z_{\frac{\alpha}{2}}] \quad (6)$$

3.4. 学習 / 検証データの準備

複数の条件で耐久テストをおこなった試験結果をデータセットとした. 試験には, 4.5 Ah クラスの円筒型 LiB を供試体として用い, 放置耐久テストとサイクル耐久テストの2種類のモードでテストをおこなった. 学習用データのための放置耐久テストでは, SOC30, 55, 80, 95% の4条

件と温度 25, 45, 50, 65℃ の 4 条件を総組み合わせでおこなう 16 条件の放置耐久テストを 4 か月間実施した。テスト期間中、1 週から 2 週のインターバルを設けて中間性能測定を実施し、1 条件当たり 10 点、トータルで 160 点のデータを取得した。サイクル耐久テストでは、サイクルさせるための制御因子である中心 SOC, 変動 SOC 幅, 温度, 充電電流, 放電電流の五つの因子を L27 の直行配列表に基づいて計画された 27 条件のテストを実施した。1 条件につき 4 か月で 10 ポイント、合計 270 点のデータポイントを確認した。検証データには、学習条件とは別の 38 条件を 12 か月にわたって耐久テストを実施し、合計 710 点のデータを取得した。

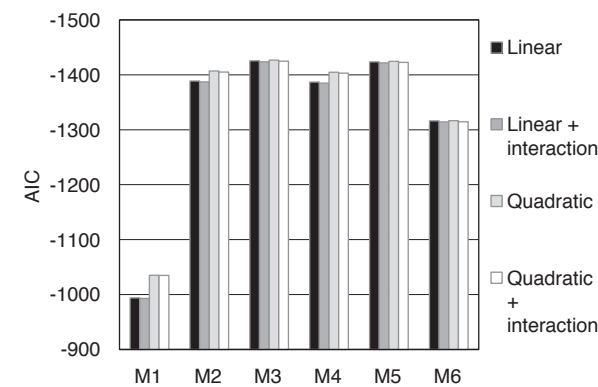
4. 結果と考察

4.1. モデル選択結果

モデル選択についてトレンド項のモデル式 4 種類と、ばらつきモデル 6 種類 (M1 から M6) から構成される合計 24 種類のモデル式に対し、パラメータ最適化を実施し、AIC を評価した。その結果を Fig. 4 に示す。

本検討で構築した M2 から M6 のいずれの場合においても従来モデルである M1 の AIC を下回る良い結果となった。従って、拡散過程、ランダム効果、またはその両方を用いたモデル式の方が実験データを適切に表現できている。

一般的にパラメータが多いモデル式ほど精度は上昇するが、パラメータの数が多すぎると汎化性能が落ちていく。汎化性能とモデル適合度のバランスが取れている、最も AIC が小さいモデルを選択するのが適切である。劣化予測



		Variation models						
		Parameter	1	2	3	2	4	3
Model formula of trend term	Parameter		M1	M2	M3	M4	M5	M6
	4	(i) Linear	-993.8	-1388.7	-1425.5	-1386.7	-1423.5	-1316.3
	5	(ii) Linear+interaction	-992.8	-1387	-1423.5	-1385	-1421.5	-1314.3
	6	(iii) Quadratic	-1035.3	-1406.8	-1426.7	-1404.8	-1424.6	-1316.6
	7	(iv) Quadratic+interaction	-1034.8	-1405.1	-1424.7	-1403.1	-1422.6	-1314.7

Fig. 4 AIC results of each model

モデル式では M3 が M5 よりパラメータ数が少ないが AIC は小さい。すなわち M3 の方がより少ないパラメータでテストで得られた電池性能劣化の本質をとらえている。ここでは 2 次 (iii) のトレンド式と M3 のモデル式の組み合わせが実験データに最も適合した結果となった。従って、測定ばらつきを含む M4 から M6 は AIC の改善が見られないためモデルに考慮する必要が無いことがわかった。

4.2. 選定モデルの信頼区間予測

前項で選択された予測モデル M3 のモデル式とそのパラメータを式 (7) に示す。また、SOC100%, 温度 45℃ で 12 か月耐久テストした実測結果と、最適化された M3 の劣化予測モデルを用いて算出された信頼区間の予測結果の一例をプロットしたものを Fig. 5 に示す。灰色に示された信頼区間は各時間での 95% 信頼区間である。全域で実測プロットが 95% の信頼区間に収まっていることが確認でき、信頼区間の可視化が適切におこなえていることが確認できた。

$$dX(t) = \lambda \times \mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t) + \sigma_B dW(\eta(t))$$

$$\mu(\eta(t), \theta_0) d\eta(t) = (a_1 SOC + a_2 Temp + a_{11} SOC^2 + a_{22} Temp^2 + a_0) d\eta(t) \quad (7)$$

$$\eta(t) = t^b$$

Term	Value	Term	Value
a_0	-5.13	μ_λ	-1.7E-2
a_1	2.6	σ_λ	1.6E-3
a_2	-1.7E-3	σ_B	7.3E-4
a_{11}	-3.2E-1		
a_{22}	1.0E-4		
b	0.55		

4.3. データ分布の確認

本検討で作成したモデルの確からしさを確認するために、学習データよりも過剰な量のデータ (放置劣化モードのデータ: 24 条件, 484 点, サイクル劣化モードのデータ: 14 条件, 226 点) に対して予測した性能分布が、実測した性能値の包含度合いを解析した。モデルで予測した代

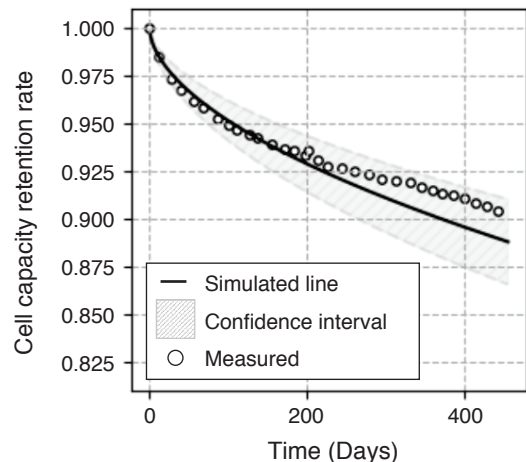


Fig. 5 Confidence interval and measured data points

表的な性能値と実測値の差分を、その時点の標準偏差で除したZ値を求め、ヒストグラム化した結果を Fig. 6 に示す。Fig. 6(a) は放置劣化モードで取得したデータに対するヒストグラム、Fig. 6(b) はサイクル劣化モードで取得したデータに対するヒストグラムである。Z 値 4, 3, 2 はそれぞれ理論上 99.9%, 99.7%, 95% を包含する信頼区間に当たる。本検討では放置モードのデータに対して、100%, 99.0%, 93.6%, サイクルモードのデータに対して、100%, 98.7%, 94.0% のデータを包含しており、おおむね理論上の値と一致する。よって、信頼度に基づく下限性能値を本モデルで算出可能であると考え、以後、実測データを 99.7% 信頼区間内に包含している百分率を被覆率と呼ぶ。

4.4. 学習期間の設定

モデル構築に必要な期間を設定するために、学習データの量と信頼区間の幅、および、被覆率について解析をおこなった。各モデルで予測した4か月時点での信頼区間の幅(%)と、99.7% 信頼区間への包含率を算出した。その結果を Fig. 7 に示す。

16 条件の放置耐久試験、及び、27 条件のサイクル耐久試験の4か月分の学習データのうち、任意の月数までの

データを用いてモデルを構築した。被覆率の算出は、学習データとは異なる38条件、合計380点のデータに対しておこなった。

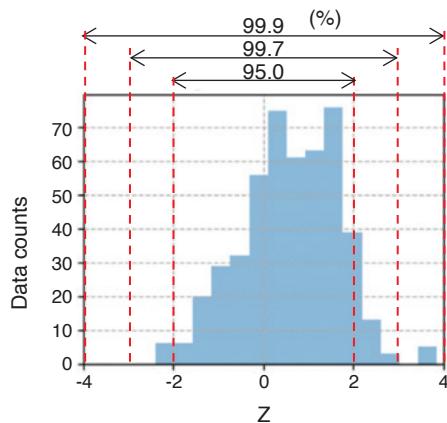
信頼区間幅は学習データの増大とともにわずかに大きくなる傾向がある。一方の被覆率は明確に高くなり、99.7% 信頼区間の被覆率は、理論通り 99.7% へ漸近して増大していく。このことは、学習データが多くなることによって信頼区間の結果には大きな影響を与えずに、予測された信頼区間の正確性が向上する効果があると推察される。本検討では、4か月の学習期間において99%以上の被覆率を示すことから、4か月以上の劣化挙動を学習することで信頼区間を予測できた。

4.5. 長期予測時の信頼区間

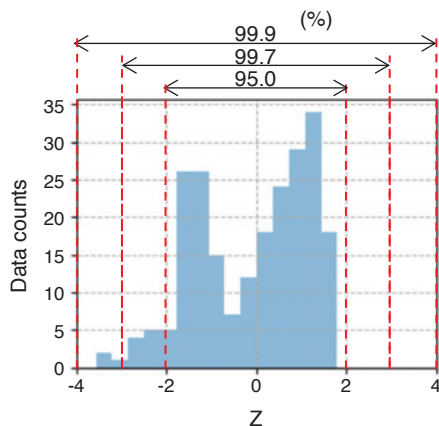
様々な使われ方をする電池性能の劣化予測は、予測期間が長くなるほど不確実性が高いため、信頼区間は広がることが予想される。

10年分の信頼区間の長期予測をおこなった結果を Fig. 8 に示す。Fig. 8(a) が従来の測定ばらつきのみ考慮したモデル M1、Fig. 8(b) が今回提案した最適化された予測モデル M3 である。

従来のモデルでは10年間にわたって均一の信頼区間が

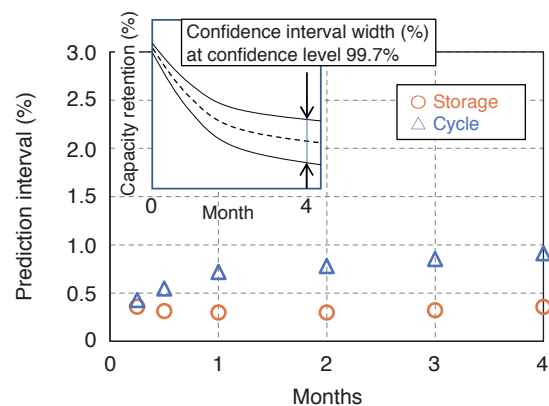


(a) Histogram of data obtained by storage mode degradation

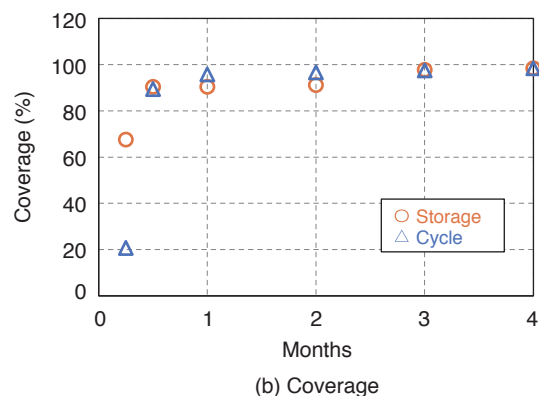


(b) Histogram of data obtained by cycle mode degradation

Fig. 6 Histograms of Z values after standardization



(a) Confidence interval width



(b) Coverage

Fig. 7 Confidence interval width and coverage of models trained with data over different periods

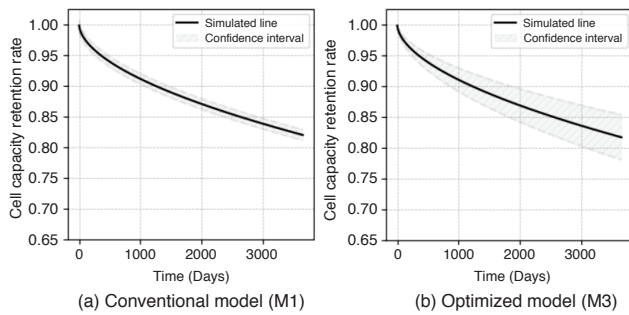


Fig. 8 Simulated confidence interval for 10 years

予測されているのに対し、本検討で最適化されたモデルでは経過時間とともに信頼区間が拡大していき、当初の想定通りの結果が得られた。従来モデルである M1 に対して、本検討で提案したモデル M3 は、4 か月のテストデータに現れる経年ばらつきの増大を適切にモデル化できていることが確認できた。

5. 結言

リチウムイオン電池の耐久テスト後の性能劣化の下限值をモデルによって効率的に予測するために、ランダム項を取り入れた劣化予測モデル式の検討で得た結論を以下にまとめる。

- (1) LiB の耐久性劣化トレンドに乘算したランダム効果と、時間に比例してばらつきが拡大する拡散過程の 2 種類の確率変数を含むモデルによりリチウムイオン電池の耐久データのばらつきを表現できることがわかった。
- (2) MCMC を援用した最尤推定法を用いることにより、局所解に陥ることなくモデルの最適化が可能である。
- (3) 最低 4 か月の耐久テスト結果を学習することで 12 か月間の信頼区間を適切に予測するモデルが構築できた。

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)
https://www.jstage.jst.go.jp/article/ieejias/134/3/134_NL3_5/_pdf, (参照 2024/12/24)
- (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, p. 5-12, (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)
https://www.meti.go.jp/shingikai/mono_info_service/chikudenchi_sustainability/pdf/001_s01_00.pdf, (参照 2024/12/24)

- (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), doi: 10.1126/science.1212741
- (5) Schmich, R., Wagner, R., Hörpel, G., Placke, T., Winter, M.: Performance and cost of materials for lithium-based rechargeable automotive batteries, *Nature Energy*, Vol. 3, p. 267-278, (2018), doi: 10.1038/s41560-018-0107-2
- (6) Final Regulation Order, Section 1962.8, Title 13, California Code of Regulations, (2022), <https://ww2.arb.ca.gov/sites/default/files/barcu/regact/2022/accii/accii1962.8.pdf>, (参照 2024/12/24)
- (7) Waag, W., Fleischer, C., Sauer, D. U.: Critical review of the methods for monitoring of lithium-ion batteries in electric and hybrid vehicles, *Journal of Power Sources*, Vol. 258, p. 321-339, (2014), doi: 10.1016/j.jpowsour.2014.02.064
- (8) McGrasso, J., Ressler, G., Inguva, S.: MEETING CUSTOMER EXPECTATIONS: Life and Safety of Batteries in Hybrid and Electric Vehicles, SAE Technical Paper TP-AAB-AABC_US_2011_20, (2011)
- (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), doi: 10.5796/denkikagaku.21-FE0014
- (10) 大道馨, 加我正, 西村拓海, 合田直弥, 富永由騎: 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, *Honda R&D Technical Review*, Vol. 35, p. 31-37
- (11) Xu, X., Tang, S., Yu, C., Xie, J., Han, X., Ouyang, M.: Remaining Useful Life Prediction of Lithium-ion Batteries Based on Wiener Process Under Time-Varying Temperature Condition, *Reliability Engineering & System Safety*, Vol. 214, (2021), doi: 10.1016/j.res.2021.107675
- (12) Russell, M. B., King, E. M., Parrish, C. A., Wang, P.: Stochastic modeling for tracking and prediction of gradual and transient battery performance degradation, *Journal of Manufacturing Systems*, Vol. 59, p. 663-674, (2021), doi: 10.1016/j.jmsy.2021.04.008
- (13) Wu, C. F. J., Hamada, M. S.: Experiments: Planning, Analysis, and Optimization, John Wiley & Sons, Inc., (2021), doi: 10.1002/9781119470007
- (14) Castillo, E., Hadi, A. S.: Modeling Lifetime Data with Application to Fatigue Models, *Journal of the*

American Statistical Association, Vol. 90, Issue 431,
p. 1041-1054, (1995), doi: 10.2307/2291341

- (15) Jacquier, E., Johannes, M., Polson, N.: MCMC
maximum likelihood for latent state models, Journal
of Econometrics, Vol. 137, Issue 2, p. 615-640, (2007),
doi: 10.1016/j.jeconom.2005.11.017

■ 著 者 ■



大道 馨



鈴木 琴音



長塚 豪己



安田 道洋