

平成 30 年 6 月 10 日現在

機関番号：32641

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06031

研究課題名(和文)劣化ばらつきを考慮した蓄電池システムの最適構成を見出す統計的設計手法に関する研究

研究課題名(英文) Statistical method for finding an optimal structure of battery pack considering degradation variability

研究代表者

築山 修治 (Tsukiyama, Shuji)

中央大学・理工学部・教授

研究者番号：90142314

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：持続可能社会の実現に不可欠な蓄電池は電池セルを直並列接続してできる電池システムである。本研究では、最適電池システムの設計手法を確立することを目的に、電池システムの寿命を推定する統計的手法と、劣化の進行を模倣するシミュレータを構築している。この統計的手法は各セルの劣化ばらつきがシステム全体にどのような影響を与えるかを解析するものであり、劣化シミュレータでは、初期ばらつき、温度特性、経時変化の影響を取り込むことができる回路モデルを考案し、用いている。これらの性能を評価するため、様々な実験を行っている。その結果、CQ EVミニカートなど、限定した用途に対してはこれらが有効であることが分かった。

研究成果の概要(英文)：In order to establish a sustainable society, a large variety of secondary batteries are necessary, each of which is a battery pack composed of many battery-cells connected in series and parallel. For constructing a practical method to design an optimal battery pack, this research devises a statistical algorithm to estimate a distribution of lifetime of a battery pack and a simulator visualizing a process of deterioration of a battery pack. The statistical algorithm evaluates the total effect to a battery pack for given aging curve and its distribution of a single cell, and the simulator uses a newly devised circuit model of a battery pack, which can take into account initial variability, thermal characteristic, and degradation caused by aging. To evaluate the performances of the statistical algorithm and the simulator, they are compared with experimental results. From the results, we found that for a restricted application such as CQ EV mini-cart, they are effective.

研究分野：大規模集積回路設計技術

キーワード：電池システム 経年劣化 劣化モデル 統計的手法 寿命予測

### 1. 研究開始当初の背景

高度情報化社会の利便性を享受しつつ持続可能な社会を形成するには、蓄電池は不可欠である。そのような蓄電池は、要求される電圧、放電容量、寿命などが用途毎に異なるため、電池セルを直並列接続して構成される電池システムである。今後の蓄電池の需要増を考えると、要求仕様に適した接続構造を見出す設計手法が不可欠となるが、その最適性を評価する指標の値は、使用環境や製造ばらつきを考慮すると、設計時に確定的な値を想定することはできない。また、蓄電池は社会基盤の一部となるであろうから、社会基盤の維持には、その交換時期が推定される必要もある。従って、電池システムの寿命を推定する統計的手法と、それを用いた最適構成手法は、ソサイエティ 5.0 を持続可能にする上で、必須の設計手法であった。

### 2. 研究の目的

本研究では、熱の影響を考慮したセルの経年劣化モデルとそのばらつきモデルを考案し、電池システムを構成する各セルのばらつきがシステム全体にどのような影響を与えるかを解析する手法を構築する。さらに、これを用いて、要求性能を満たす電池システムの最適構成を見出すための統計的設計手法を確立する。これらを、以下の2つの研究課題に分けて取り組む。(A)「最適電池システムの統計的設計手法の確立」。(B)「電池セルの劣化ばらつきモデルの構築」

### 3. 研究の方法

(1) 初年度は、劣化ばらつきモデルの簡易版を構築し、各セルの劣化曲線およびそのばらつきの表現方法を定め、セルが直列接続されたモジュール全体の劣化曲線を推定するアルゴリズムを構築する。既に構築済みのセルの容量維持率の劣化ばらつきから直列接続されたモジュールの寿命ばらつきを推定する手法に、充電率のばらつきの影響を取り込むことを目指す。また、研究者間の連絡を密にし、現実的な劣化ばらつきモデルを用いたアルゴリズムを構築すると共に、アルゴリズムおよび劣化ばらつきモデルの性能を検証する。さらに、リチウムイオン電池を利用して実験するが、電池の種類に依存しないモデルを目指し、劣化モデルの電気化学的裏付けも行う。

(2) 研究課題(A)では、直列接続されたモジュールの劣化曲線とそのばらつきが、各セルの容量維持率のばらつきに依存してどのように変化するかを解析するアルゴリズムを構築する。同時に、解析アルゴリズムのプログラム化と、ばらつきの可視化、モンテカルロシミュレーションを用いた検証を行う。研究課題(B)では、電池システムの発熱冷却特性および熱分布の解析手法を構築し、実電池を用いてこの手法の精度を検証する。次に、熱や劣化の影響を考慮できる電池回路モ

デルを構築し、セルが直並列接続された小規模モジュール特性を解析する回路シミュレータを構築する。さらに、実際に小規模モジュールを作成し、その特性を計測して、シミュレーション結果と比べる。

(3) 次年度は、セルが並列接続されたモジュールの劣化曲線を解析するアルゴリズムを構築し、これと前年度に構築した直列接続用のものを組み合わせ、任意の直並列接続に対応できるものにする。また、劣化ばらつきモデルに熱解析の結果を取り込むことにより、モデルの高精度化を進めると共に、劣化のメカニズムを逐次模倣していく劣化シミュレータを構築する。さらに、4直列4並列程度の小規模モジュールにおける充放電特性とその劣化特性を調べ、シミュレーションとの比較を行う。

(4) 研究課題(A)では、並列接続されたモジュールの劣化曲線とそのばらつきが、各セルの充電率のばらつきおよび容積維持率の劣化とそのばらつきに応じてどのように変化するかを解析するアルゴリズムを構築する。また、これに前年度に構築した直列接続されたモジュール用のアルゴリズムを組み込み、任意の直並列構造を持つ電池システムに対して、その劣化曲線とばらつきを解析するアルゴリズムを構築する。さらに、このアルゴリズムをプログラム化し、モンテカルロシミュレーションを用いて検証する。研究課題(B)では、電池システムにおける熱分布シミュレータを構築する。また、小規模モジュールを作成し、充放電特性とその劣化特性を調査し、熱分布シミュレータの精度を検証する。さらに、熱分布シミュレータを用い、製造ばらつきも考慮した劣化シミュレータを構築する。

(5) 最終年度には、電池システムの劣化を解析するアルゴリズムと熱分布シミュレータで得られる結果を利用して、最適構成(直並列回路)を見出すアルゴリズムを構築し、実用的設計ツールを作成する。ここでは、寿命を最優先指標とした最適性を考えるが、製造コストの指標も取り込めるようにし、複数のパレート最適解を出力可能なツールとする。また、各セルの劣化が電池システム全体の劣化を進めるメカニズムを可視化する劣化シミュレータを構築し、これを用いて、研究課題(A)で作成した設計ツールの性能検証を行う。

(6) 研究課題(A)では、電池システムの最適構成を見出すアルゴリズムを構築し、そのプログラム化を行うことにより、モンテカルロシミュレーションを行う準備をする。また、研究課題(B)で作成した劣化シミュレータを用いて、モンテカルロシミュレーションによりその性能を検証し、アルゴリズムの改善を図る。研究課題(B)では、前年度に構築した劣化シミュレータのプログラム化を終了し、研究課題(A)で利用できるようにすると共に、劣化進行メカニズム(劣化シミュ

レータの動作)を可視化できるようにもする。さらに、小規模モジュールに適用して、その検証を行う。

#### 4. 研究成果

研究課題(A)の「最適電池システムの統計的設計手法の確立」に関して、以下の(1)から(7)の成果が、研究課題(B)の「電池セルの劣化ばらつきモデルの構築」に関して、(8)から(12)の成果が得られた。

(1) セルのサイクル劣化情報を用いて、直列あるいは並列接続されたモジュールの劣化を推定する手法を構築した。この手法は、典型的なサイクル劣化曲線のばらつきを混合正規分布で表現した後、相関も考慮して寿命分布を求めるものである。ただし、数千セル程度の電池システムであれば、任意の分布形状に対してモンテカルロシミュレーションを用いて寿命分布を求めることも可能である。ただし、その際には、相関を考慮した乱数生成を行う必要がある。

(2) セルのサイクル劣化ばらつきを、初期ばらつきと容量維持率のばらつきを用いて表現するモデルを確立した。また、その妥当性を確認するため、ある企業の協力によって得られたサイクル劣化実験結果より、サイクル劣化ばらつきを混合正規分布で表現可能であることを確認した。さらに、0.7C 充電 1C 放電の充放電サイクルが300回以内であれば、提案した寿命分布予測手法は有効であることが分かった。

(3) 寿命分布予測手法では、混合正規分布に対する最小値演算および平均値演算を繰り返し実行する必要がある。これらを効率良く行うためには、成分個数の削減手法が必要となる。また、精度良く共分散を計算する手法も必要となる。これらに対して、新しい手法を開発し、多数の成分を持つ分布を精度よく2つの成分を持つ混合正規分布に変換する手法を構築した。さらに、モンテカルロシミュレーションを用いて精度検証を行い、成分個数を2個にする提案手法が、精度および効率の両面から実用的であることを確認した。

(4) 100個のセルを10並列10直列にする例題に対して、最適構成を求めてみたところ、どのセルも同じサイクル劣化曲線のばらつきの範囲内にあるという条件の下では、10並列モジュールを10直列にする方が、10直列モジュールを10並列するより寿命分布が良い(平均的に寿命が長くなる)という結果が得られた。これは、セルを並列接続すると、各セルの劣化速度が均等化するという実験結果からも妥当な結果である。

(5) しかし、各セルが同じサイクル劣化曲線のばらつきの範囲内にあるという仮定は、総数120個の18650型Li-Ion電池を用いた9種類のサイクル劣化試験の結果、無理があることが判明した。すなわち、300サイクルを超えると劣化のばらつきが大きくなり、そのばらつきを用いて寿命予測すると、実用的で

はない広範囲の寿命分布になることが判明した。なお、実験では放電容量に着目しているが、電池システムを実用に供する場合にも放電容量が寿命を決定するため、妥当な評価方法であると考えている。

(6) そこで、実用的な寿命予測を行うには、劣化曲線およびそのばらつきと相関を、適応的に変化させる必要があるとの判断から、サイクル劣化試験のデータの解析を行った。その結果、サイクル初期には電池容量の減少が、中期には内部抵抗の上昇が、それぞれ放電容量減少(劣化)の主要因であり、終期にはこの両方の要因により、放電容量が急激に(非線形的に)減少することを見いだした。検査用の充放電サイクルを実行し、各セルがどの時期にあるかが推定できれば、その時期に応じた劣化曲線とばらつきを寿命分布予測手法に入力することにより、実用的な寿命分布が得られるであろう。そのためには、セルがどの時期にあるかを見いだす必要があるが、その手法については成果を得ることができなかった。

(7) 放電容量の急激な減少が、4個のセルを直列接続したモジュールにおいても生じており、10モジュール中2つのモジュールにおいてその発生が早かった。その際、高電圧側のセルの開回路電圧が他のセルに比べて0.2V程度高くなっていったため、電気化学インピーダンス法により解析した。その結果、高電圧側のセルにおいて、内部抵抗が上昇するような劣化が起こり、電極インピーダンスが高くなっていった。また、ナイキスト線図より、電荷移動抵抗の増大が顕著に確認され、半円の頂点の周波数が0.1Hzと1Hzの間に位置することから、正極側の劣化が強く示唆された。正極側のジュール熱による温度上昇が要因ではないかと推測しているが、そのメカニズムの解明は終わっていない。

(8) 初期ばらつき、温度特性、経時変化を取り込める高精度な組電池用回路モデルを考案し、これを用いて組電池の劣化の進行をシミュレーションする動作シミュレータを作成した。このシミュレータは、熱回路法を用いた熱分布計算、放熱の違いによる劣化ばらつき、内部抵抗ばらつきの発生過程、充電電流の分流、充電容量や充電率の変動が生じるメカニズム、それらに起因する劣化ばらつきをシミュレーションできる。

(9) この動作シミュレータを高精度化するため、18650型Li-Ion電池を用いて劣化のSOC依存性、充放電電流依存性、温度依存性の実データ測定し、回路モデルに組み込むことにより、精度検証を行った。また、同電池セルを8段直列接続したモジュールを10並列にした組電池に対して、熱分布、内部抵抗、充電容量を測定し、回路モデルへの反映(キャリブレーション)を行い、精度検証を行った。その結果、充電スケジュールや充電時の空冷の有無による劣化変動を高精度に推定することが可能となり、電池交換を最小化する

る条件も明らかとなった。充電時の空冷により約 10%の長寿命化、充電スケジュールの最適化により 5%の長寿命化を確認した。いずれも内部温度分布の平準化の効果によるものである。

(10) この動作シミュレータを高速化するため、大規模熱回路網に対する GPU を用いた並列計算手法を確立した。この手法は、3 次元回路網シミュレーションを高速化するための疎行列を圧縮した新しいデータ構造を用いており、従来技術として広く用いられていた ELMA と同精度で 4 倍高速なものとなっている。そのため、電池を搭載した電子システムの熱回路網解析による温度分布解析を高速かつ高精度に行うことができる。これを発表した HEFAT2016 では、Best Paper Award を受賞している（学術発表）。

(11) MATLAB を用いて組蓄電池の劣化進行メカニズムを可視化し、SEI 劣化の電流依存性や、正極抵抗劣化の SOC 依存性を表現する劣化傾向式を構築した。この劣化傾向式は、温度による依存性がアレニウス式により考慮されており、組蓄電池の温度分布に基づく劣化ばらつきの解析も高精度に行える。また、小規模モジュールを用いた充放電実験により、SEI による容量劣化と正極の正方晶化による抵抗劣化に関する傾向式に現れる各パラメータを同定し、シミュレーションに反映した。

(12) これらのパラメータの精度検証のため、電気自動車での使用条件に基づき、劣化の進行を予測するシステムを構築し、残走行距離を 5%以下の誤差で予測できることを確認した。また、CQ EV ミニカート用のシミュレーションモデルを作成し、加速条件の最適化実験を同シミュレーションにより行い、実車での走行最適化の事前検証を行った。筑波サーキットにて開催の CQ EV ミニカート・レースに参戦し、初参加ながら全体で 5 位、リチウムイオン電池部門では 2 位（学生 1 位）を獲得した。

(13) 本研究成果である統計的寿命分布予測手法および劣化進行シミュレータによって得られる寿命分布予測の有用性は、ひとえに入力として与える劣化曲線とそのばらつきの精度に依存する。本研究では、それに関して直ちに使用できる知見は得られなかったが、現在、セルの劣化と環境の因果関係を調べるため、温度、電圧、湿度、気圧、紫外線、磁場などの環境条件を自動的に取り込み、機械学習を用いてそれらと放電容量の関係を解析するシステムを構築し始めている。今後、電気化学、電気回路、統計学、ビッグデータ解析の各技術を統合することにより、電池システムの実用的な劣化予測技術を完成させたいと考えている。

## 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

### 〔雑誌論文〕(計 6 件)

有馬理仁, 林磊, 福井正博, 島田幸司, リチウムイオン蓄電池の経済性推定モデルの検討, エネルギー・資源学会論文誌, 査読有, 38 巻, 2018, 採録決定

Daiki Azuma, Shuji Tsukiyama, A new algorithm to determine covariance in statistical maximum for Gaussian mixture model, IEICE Trans. Fundamentals, 査読有, vol.E100-A, 2017, pp.2834-2841, DOI: 10.1587/transfun.E100.A.2834

Masahiro Fukui, Yukinori Hayakawa, Lei Lin, A Li-ion battery pack level degradation simulator with consideration of thermal and electrical conditions, ECS Transaction, 査読有, vol.75, 2017, pp.103-110, DOI: 10.1149/07520.0103ecst

Lei Lin, Hironori Ono, Masahiro Fukui, Kiyotsugu Takaba, An accurate SOC estimator for Lithium-ion batteries which considers thermal variation, ECS Transaction, 査読有, vol.75, 2017, pp.111-119, DOI: 10.1149/07520.0111ecst

Naoya Yokoyama, Daiki Azuma, Shuji Tsukiyama, Masahiro Fukui, A new algorithm for reducing components of a Gaussian mixture model, IEICE Trans. Fundamentals, 査読有, vol.E99-A, 2017, pp.2425-2434, DOI: 10.1587/transfun.E99.A.2425

### 〔学会発表〕(計 43 件)

Ryota Kimikado, et al., Proposal of charging system from unstable power supply to the lithium-ion battery, IEEE Int. Conf. on Industrial Electronics for Sustainable Energy System, 2018

Daiki Azuma, et al., Approximating the maximum of Gaussians by a Gaussian mixture model for statistical designs, 2017 European Conf. on Circuit Theory and Design, 2017

Masahiro Fukui, et al., Analytical thermal modeling and calibration method for lithium-ion batteries, Int. Conf. on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, 2017

Yukinori Hayakawa, et al., Combined RLS- KF method for SOC and parameter estimation of lithium-ion batteries, PRiME 2017/232th ECS Meeting, 2017

日吉啓太, 他, リチウムイオン電池のサイクル劣化バラツキの解析, 電気化学会第 84 大会, 2017

Masahiro Fukui, et al., Three-dimensional multi-physics thermal-

analysis system for electronic systems, Int. Conf. on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, 2016  
Hironori Ono, et al., A precise FCC estimation algorithm based on recursive least squares identification of Li-ion batteries with adaptive forgetting factor tuning, PRiME 2016/230th ECS Meeting, 2016  
Yukinori Hayakawa, et al., A practical degradation simulator for assembled Li-ion batteries with calibration functions, PRiME 2016/230th ECS Meeting, 2016  
Keita Hiyoshi, et al., Experiments on distributions of cycle degradations of Li-Ion batteries, PRiME 2016/230th ECS Meeting, 2016  
大矢将輝, 他, 拡張カルマンフィルタによるリチウムイオン電池のSOC推定法の比較検討, 電池討論会, 2016  
Ryu Ishizaki, et al., A thermal dynamic SOC estimator for Lithium-ion batteries, IEEE Vehicle Power and Propulsion Conf. 2015  
梅田崇志, 他, リチウムイオン電池用充電装置の特性解析, 電気学会産業応用部門大会, 2015  
Shuji Tsukiyama, et al., A statistical method for analyzing lifetime of a battery pack, IEEE Power & Energy Society General Meeting, 2015  
大矢将輝, 他, パラメータ依存状態空間モデルに基づく蓄電池のSoC推定, 第59回システム制御情報学会研究発表講演, 2015

〔図書〕(計 4 件)

福井正博, 電気自動車の開発に向けた最適なバッテリーマネジメント技術と市場動向, シーエムシー・リサーチ, 2017, 201  
福井正博 (分担執筆), リチウムイオン二次電池の長期信頼性と性能の確保, サイエンス&テクノロジー, 2017, 24  
福井正博 (分担執筆), リチウムイオン蓄電池の徹底研究・MOTER エレクトロニクス No.4, CQ 出版, 2016, 47  
福井正博 (分担執筆), LSI 入門 - 動作原理から論理回路設計まで, 森北出版, 2016, 185

〔産業財産権〕

出願状況 (計 2 件)

名称: 電池等価回路モデルの評価装置  
発明者: 鷹羽浄嗣, 福井正博  
権利者: 立命館大学  
種類: 特許  
番号: 特願 2017-133389

出願年月日: 2017年7月7日  
国内外の別: 国内

名称: 電池管理方法、電池管理装置、及びコンピュータプログラム  
発明者: 福井正博  
権利者: 福井正博  
種類: 特許  
番号: 特願 2017-034880  
出願年月日: 2017年2月27日  
国内外の別: 国内

取得状況 (計 1 件)

名称: 蓄電池劣化診断方法および蓄電池劣化診断装置  
発明者: 福井正博  
権利者: 立命館大学  
種類: 特許  
番号: 特許第 6238314 号  
取得年月日: 2017年11月10日  
国内外の別: 国内

〔その他〕  
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

築山 修治 (TSUKIYAMA, Shuji)  
中央大学・理工学部・教授  
研究者番号: 90142314

(2) 研究分担者

福井 正博 (FUKUI, Masahiro)  
立命館大学・理工学部・教授  
研究者番号: 50367992

(3) 連携研究者

松永 真理子 (MATSUNAGA, Mariko)  
中央大学・理工学部・准教授  
研究者番号: 90507881

(4) 研究協力者

( )