

# B 機械学習・深層学習をもちいたデータ駆動型電池劣化特性予測モデリング

リチウムイオン電池(以後はLIBと記述)は、スマートフォンをはじめとする情報機器端末から、電気自動車、航空機や宇宙ステーションなどの輸送機に至るまで幅広く搭載されており、LIBの劣化予測技術はこれらの製品寿命を評価する上できわめて重要となっている。

最近我々は、電極の各劣化状態の断面SEM像から深層学習による特徴量抽出を行った上で、それらの時間発展を機械学習(ガウス過程)で回帰する新たな劣化予測モデル構築技術(以後はDDM-IP: Data Driven Modeling with Image Processingと記述)を開発し、お客様に提案している。本モデルでは劣化状態の特徴量が自動で抽出・選択されるため、客観的な劣化要因の推定を行いつつ、精度の高い予測が可能であるところが大きな利点となる。本稿では、高容量負極材料の一つであるSiO-グラファイト電極の劣化を対象とした解析事例を紹介する。



技術本部  
計算科学センター  
たかよし よういち  
高岸 洋一

## B-1 分析画像に基づくデータ駆動型劣化予測モデリング(DDM-IP)

### 1.1 モデリング概要

これまでのLIB劣化挙動に対する高精度な予測方法として電極内部のさまざまな劣化現象を常微分または偏微分方程式として考慮する方法(物理モデル)が提案されてきた<sup>1)</sup>。しかし、これら物理モデルでは予め劣化要因を仮定していることや、各劣化幅を平均化して近似していることなど、妥当性については議論が必要であった。一方、最近では機械学習を用いたデータ駆動型の予測技術が注目されており、容量推移データのみから劣化挙動を予測する方法などが報告されている<sup>2)</sup>。ただし、この方法では回帰・予測としては優れた性能を示すものの、劣化要因を推定できないためセル設計や運用条件へのフィードバックが難しい側面を持つ。

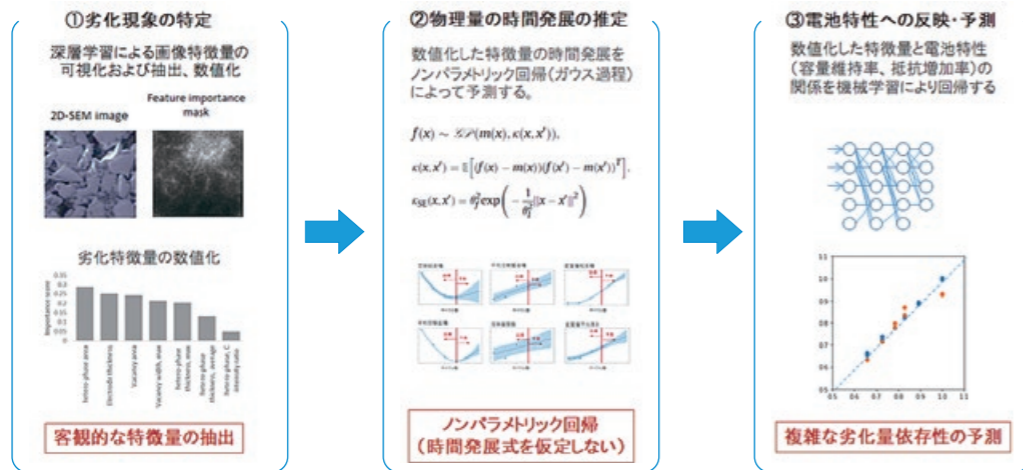
最近我々は、電極の各劣化状態の断面SEM像から深層学習および画像解析による統計的な特徴量抽出を行い、それらの時間発展をガウス過程回帰により推定する新たな劣化予測モデル構築

技術を開発した。本モデルでは劣化状態の特徴量が分析画像から自動で抽出・選択されるため、客観的な劣化要因の推定を行いつつ、精度の高い予測が可能であるところが大きな利点である。

DDM-IPの流れを第1図に示す。このアプローチでは、あらかじめ観測者が現象を仮定せずに可能な限り観測データのみから特徴量を獲得し、あらかじめ関数型を規定することなく劣化量の時間変化を予測する。主な流れは次のとおりである。

- ①各劣化状態における分析画像(ここでは電極断面SEM像)の箇所を深層学習によって可視化し、劣化画像の特徴箇所を特定する。また、画像処理によってこれらの特徴箇所が示す統計的な劣化特徴量をスコア化する。
- ②これらスコアが時間とともにどのように変化するか、関数形をあらかじめ規定しないノンパラメトリック回帰により予測する。
- ③各スコアと実際の電池容量の劣化量を対応付ける反映パラメータを、人工ニューラルネットワークにより決定する。

第1図 分析画像を用いたデータ駆動型劣化モデリング(DDM-IP)の流れ



### 1.2 実測データ取得

機械学習に用いる実測データ取得のため、試作の評価用電池セル(コインセル)を作成した。電極および電解液は可能な限り一般的な材料とし、正極LiNi<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>O<sub>2</sub>、負極SiO-グラファイト、電解液1M LiPF<sub>6</sub>(EC:DEC=1:1)を採用した。なお、コインセルはφ10[mm]、容量4.8[mAh]とした。次に初期充放電の後、温度25[°C]、上限電圧4.0[V]、下限電圧3.0[V]、レート1C条件において充放電サイクル試験を実施し、サイクルごとの容量を測定した。また、各劣化状態における負極SiO電極の断面SEM観察を実施した。最大サイクル数は100とした。

### 1.3 FIB-SEM像の特徴量抽出と選定

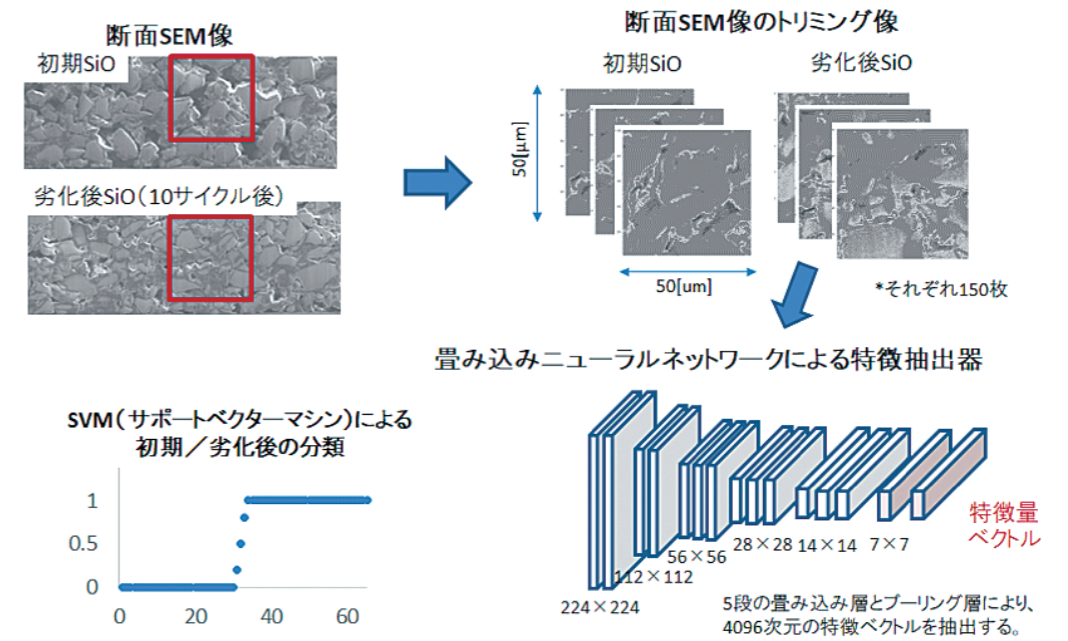
初期状態および劣化状態(10サイクル後)それぞれの負極断面SEM像を50[μm]四方にトリミング・水増し、畳み込みニューラルネットワーク(以後はCNN: Convolutional Neural Networkと

記述)による劣化状態分類モデルを構築した。なお、CNN特徴量抽出器は、ImageNet 1000クラス分類で実績のあるVGG164)をベースとし、全結合層および1つ前のブロックのみを対象に独自に調整した。なお、得られた特徴量ベクトルをもちいてサポートベクターマシンによる分類を実施した結果、50画像程度の学習で良好な分類特性を示した。

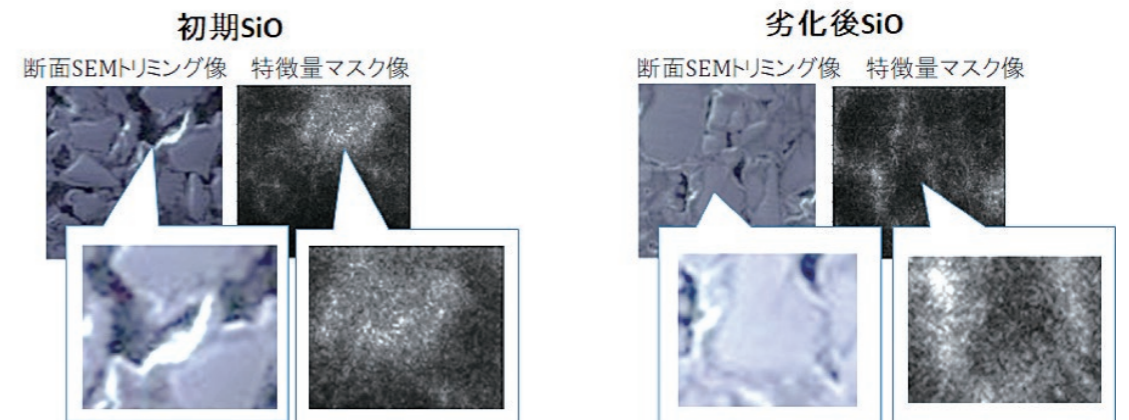
第2図にこれらの流れを示した。

さらに、損失関数の勾配を入力画像へバックプロパゲーションすることで特徴箇所を可視化した<sup>3)</sup>(第3図参照)。マスク像の特徴箇所では、比較的広い空隙や活物質周囲で高い反応を示しており、これらの領域が劣化を特徴付けていると解釈できる。ただし、この劣化特徴を表すベクトルは、そのままでは解釈性が低く、必ずしも劣化予測に使用することができない。そこで本検討では、特徴箇所をもとに空隙面積、表面粗さ、活物質表層の平均膜厚などの画像上の統計量を算出し、劣化特徴量と定義した。

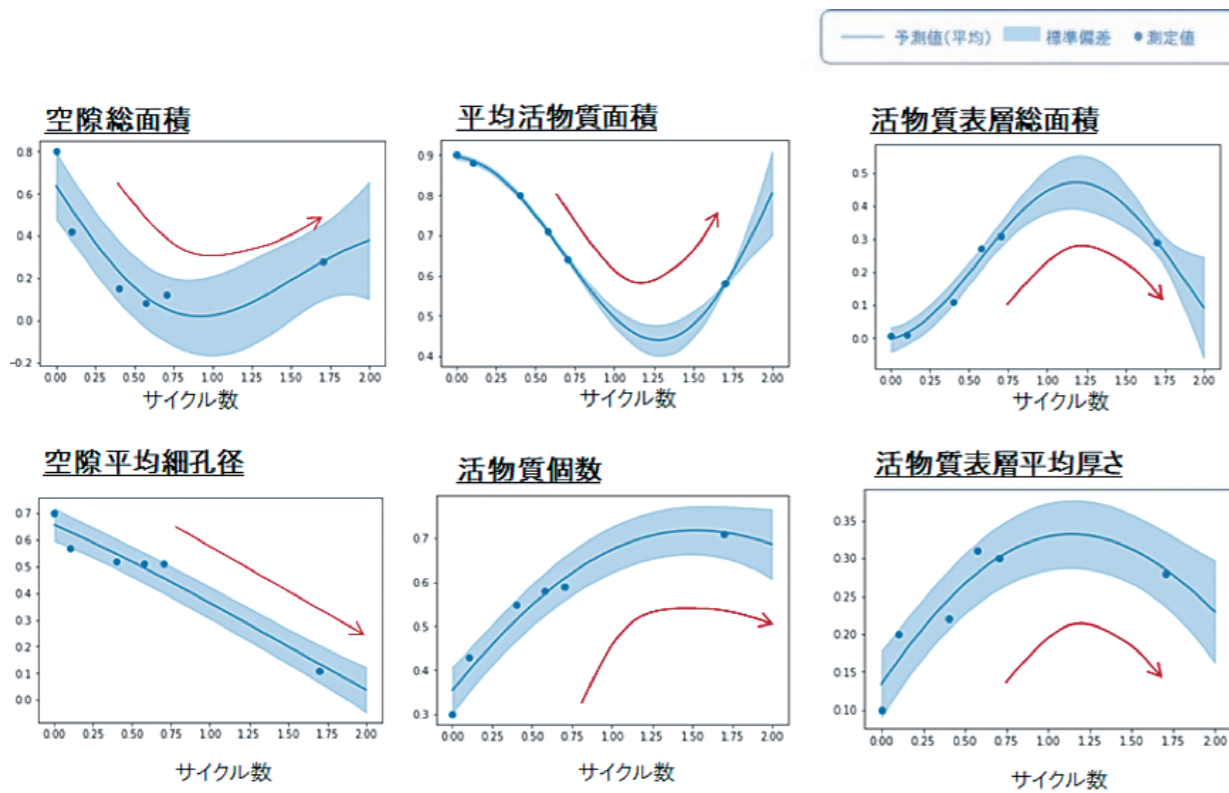
第2図 深層学習を用いたFIB-SEM像の特徴量抽出・分類の流れ



第3図 特徴箇所の可視化例



第4図 劣化特微量のサイクル変化の回帰例 縦軸は規格化された値であり、横軸は対数表記である。



### 1.4 劣化特微量のサイクル変化

1.3にて数値化した劣化特微量の時間変化に対し、充放電サイクル数をパラメータとしたガウス過程回帰によって予測した。ガウス過程回帰はノンパラメトリック回帰法の一つであり、データ間をカーネル関数によって確率的に補間することで、関数形状を規定することなくデータの特徴から適応的に回帰・予測を行う方法である。本解析では下式で示されるガウシアンカーネルを採用した。

$$k_{SE}(x, x') = \theta_f^2 \exp\left(-\frac{1}{\theta_l} \|x - x'\|^2\right)$$

ここで、 $x, x'$ はデータベクトル、 $\theta_f, \theta_l$ はそれぞれスケールパラメータである。

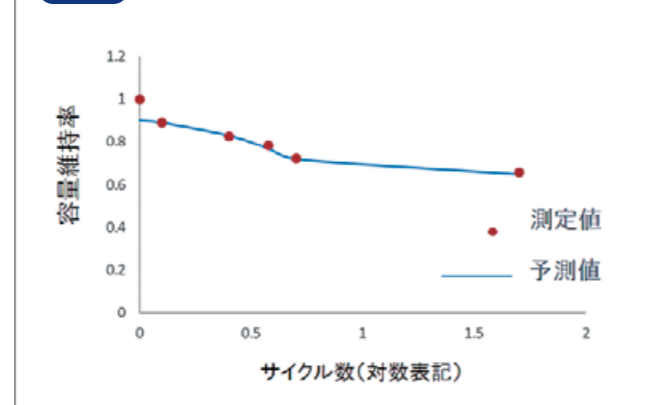
第4図に劣化特微量のサイクル変化の回帰例を示す。ここでは、一例として画像内の空隙総面積、平均活物質面積、活物質表層領域の総面積・厚さ、空隙の平均細孔径および活物質個数それぞれのサイクル変化を挙げている。なお、縦軸の各劣化特微量はMaxMin法により規格化しており、横軸のサイクル数は対数表記としている。例えば、活物質表層の厚さはサイクルと共に必ずしも単調増加していないことが分かる。即ち、実測の電池容量は単調に減少しているが、各スコアはサイクルとともに上下しており、複雑な挙動を示している。従来型の物理モデルでは比較的単調な物理量の時間変化を想定しているが、必ずしも現象を十分に捉えていないことが示唆される。

### 1.5 劣化特微量と低下容量の関係

前節にて回帰した各劣化特微量の組み合わせが、電極の劣化量と対応していると考えられる。そこで、各スコアのサイクル変化と、実測の劣化量(容量低下)を反映パラメータによって対応付ける。本解析では、各劣化特微量を入力、反映パラメータを出力とする人工ニューラルネットワークによって対応付ける(反映パラメータはサイクル数に依存しないと仮定する)。なお、実測の測定容量だけではデータ点数に限られるため、データ間を補間した上で回帰している。

第5図は実測した容量維持率と劣化量から回帰した容量維持率の比較である。モデルは良好に回帰していることが分かる。

第5図 実測容量維持率と劣化量から回帰した容量維持率の比較



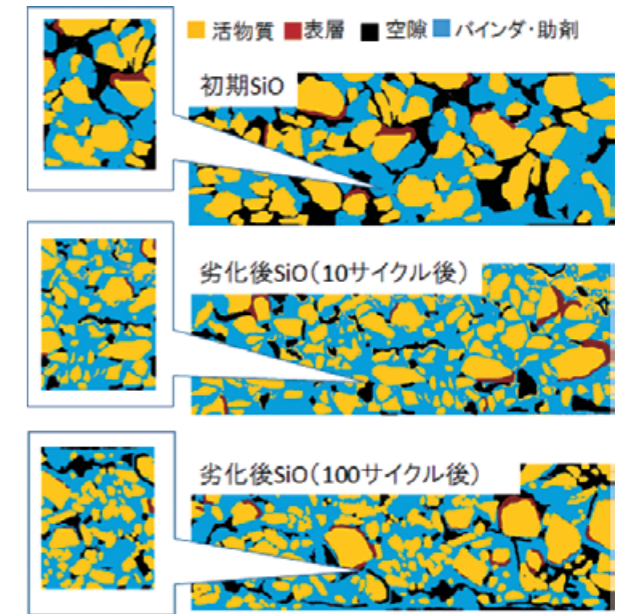
### 1.6 考察

構築したニューラルネットワークの入力層と中間層第1層の係数から、各劣化特微量の寄与度を分析した。その結果、活物質平均面積や活物質密度など活物質サイズに起因する特微量や、空隙の細孔径が高い値を示し、これらの寄与が大きいものと考えられる。初期、および100サイクル後における、負極断面のセグメンテーション画像を第6図に示す。サイクル進行とともに活物質サイズが減少しており、なおかつ細かい空隙が増加していることが確認できる。従って、劣化は活物質の微粉化およびクラックの進展が主たる要因と推察され、電極設計へのフィードバックが可能となる。

このように、DDM-IPによるアプローチによって、データ駆動による劣化予測が可能となっただけでなく、電極劣化に関する特徴および主要な要因が抽出されたことは意義深い。また、本解析では断面SEM像のみを学習データとしたため、その他の情報(XPS、TEM-EELSなど)を含めることで、さらなるモデルの高度化が期待される。

その一方、本アプローチでは物理現象を仮定しないため、データ品質が極めて重要となり、十分なデータ品質および数の確保が課題となる。さらに、ここで抽出される特微量同士の関係はあくまでも相関関係に過ぎず、疑似相関には十分な注意が必要である。

第6図 初期、10サイクル後、および100サイクル後における、負極断面のセグメンテーション画像



リチウムイオン電池の負極SiO電極を対象とし、各劣化状態の断面SEM像から深層学習による特微量の抽出を行った上で、それらの時間発展を機械学習(ガウス過程)で回帰する新たな劣化予測モデル構築事例を紹介した。本モデルは主観的な要素を可能な限り排除しており、より客観的なデータに基づく予測や現象の理解に資するものとする。画像だけでなく、XPSやTEM-EELSなどのデータを組み合わせることで、更なる精度向上や現象の抽出が期待される。

今後は、電極内部の劣化現象と劣化した電池モジュールの非破壊特性(容量、抵抗、dV.dQ特性、発熱分布、等)の相関モデルを構築することで、非破壊により劣化状態を推する手法の確立を進める。

参考文献 \*1) Y. Takagishi and T. Yamaue, International Journal of Automotive Engineering, vol.8 no.3, p.143 (2017).  
 \*2) R. Richardson et al., Journal of Power Sources 357 (2017) p. 209.  
 \*3) D. Smilkov et al., cs.LG 12 (2017).  
 \*4) Karen Simonyan, Andrew Zisserman, arXiv:1409.1556.