

(論文)

# 機械学習・深層学習を用いたデータ駆動型バッテリー劣化予測技術

高岸洋一\*<sup>1</sup>(博士(理学))・山上達也\*<sup>1</sup>(博士(工学))

## Battery Degradation Modeling Based on FIB-SEM Image Features Extracted by Deep Neural Network

Dr. Yoichi TAKAGISHI・Dr. Tatsuya YAMAUE

### 要旨

リチウムイオン電池の劣化や寿命予測に対する試みが注目されている。本稿では、劣化進展を電気化学反応式などにより予測する物理モデルに加えて、深層学習による特徴抽出や回帰を組み合わせたデータ駆動型予測モデルについて、特徴や利点・欠点などを調べた。その結果、物理モデルでは、劣化現象が比較的明確である場合には予測精度が高いものの、現象が複雑または不明である場合には適用が難しいことが分かった。いっぽう、データ駆動型モデルでは、現象が十分に明らかでなくてもモデル化が可能であり、劣化予測精度において高い優位性を持つと考えられる。構築されたモデルを考察することにより、隠れた現象解明にも有用であることが分かった。

### Abstract

Attention is being paid to attempts at predicting the deterioration and life of lithium-ion batteries. This paper focuses on the examination conducted on the features, advantages, disadvantages, etc., of a data driven prediction model that combines feature extraction and regression by deep learning. Also described is a physico-chemical model that predicts deterioration progress by electrochemical reaction formula and the like. As a result, it was found that in the physico-chemical model, the prediction accuracy is high when the deterioration phenomena are relatively clear, but its application is difficult when the phenomena are complicated or unknown. On the other hand, data-driven modeling can be done even when the phenomena are not sufficiently clear and is considered to have a great advantage in predicting deterioration accurately. Further consideration of the constructed model has also turned out to be useful for elucidating hidden phenomena.

### 検索用キーワード

リチウムイオン電池, 寿命予測, 劣化, 深層学習, 機械学習, データ駆動

まえがき = リチウムイオン電池 (Lithium Ion Battery, 以下 LIB という) は、ノート PC や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、人工衛星などの輸送機に至るまで、さまざまな機器への搭載が進んでいる。このため、LIB の劣化を予測する技術はこれらの機器寿命を評価する上で極めて重要になっている。

LIB の劣化予測方法として、単純な経験則 (べき乗則, 対数則) に加えて、人が劣化現象の仮説を立てて電気化学反応式などを数値的に解く「物理モデル (電気化学モデル)」のほか、最近では機械学習を用いて充放電サイクルデータから余寿命を予測する「データ駆動型モデル」が盛んに研究されている。これらのアプローチについて、縦軸に仮説駆動/データ駆動、横軸にブラックボックス/ホワイトボックスをとってまとめたマップを図 1 に示す。ここで、仮説駆動とは人がさまざまな仮定 (単純化・均質化など) をおいて現象をモデル化することを意味し、データ駆動とは実測データに適合するモデルを機械学習により構築する方法を指す。また、ブラックボックスとは現象を入力と出力の関係のみで記述する方法を指し、ホワイトボックスとは現象の詳細 (ここでは電気化学反応、濃度拡散など) を考慮したモデリング方法

を指す。ルート則<sup>1)</sup>に代表される経験的方法 (第 2 象限) では、簡便な関数を用いるため適用が容易であるものの、その妥当性については常に議論が必要となる。物理モデル<sup>2)</sup> (第 1 象限) では、現象を想定しているため厳密であるが、現象自体が複雑である場合や不明なプロセスがある場合にはモデル構築が難しい。いっぽう、最近ではさまざまな条件における劣化データに対して機械学

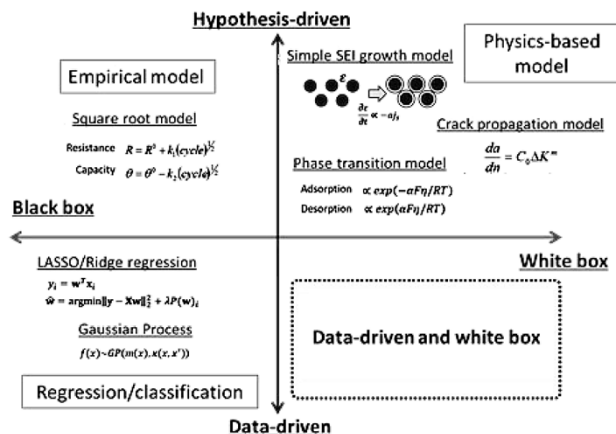


図 1 LIB の劣化予測アプローチマップ  
Fig.1 Approach map for predicting degradation of Li-ion batteries

\* (株)コベルコ科研 技術本部 計算科学センター

習を積極的に適用するデータ駆動型のアプローチ<sup>3)</sup>が注目されている(第3象限)。しかしながら、それらの多くはメカニズムを考察しないブラックボックスがほとんどであり、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ことが多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。

(株)コベルコ科研(以下、当社という)は最近、データ駆動型アプローチをとりつつ、劣化現象を想定したホワイトボックス手法<sup>4)</sup>を提案している(第4象限)。本稿では、劣化複合現象をモデル化した従来型の物理モデルについて簡単に解説したうえで、電極断面SEM像から劣化を予測するデータ駆動型ホワイトボックスモデルについて解説する。

## 1. 従来型物理モデル

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方程式または偏微分方程式として考慮する方法(物理モデル)がこれまで提案されてきた<sup>1)</sup>。物理モデルによる劣化予測スキームの例を図2に示す。はじめに、SEMやTEM/EELSなどのさまざまな観察により、電池劣化における重要な現象を特定する。LIBを対象とした場合、活物質表面に堆積する不動態(Solid Electrolyte Interface, 以下SEIという)膜や、活物質表層の構造転移、粒子間のクラックなどが主な劣化現象として知られており、それぞれ“Simple SEI growth model”, “Phase transition model”, “Crack propagation model”などのモデル化手法が提案されている。つぎに、特定した劣化現象に対して物理量の時間発展の予測式を構築する。例えば、SEI膜の成長であれば、通常ターフェルの式に基づく副反応電流を計算し、膜厚の成長速度はこれに比例すると仮定する 경우가多い。最後に、物理量を電池特性(充放電抵抗, 容量)に反映・換算し、その後の挙動を予測する。この際に用いるパラメータ(以下、反映パラメータという)は、実測に対するフィッティングにより決定する。フィッティングには、正則化項付きの最小二乗法による逐次最適化やカルマンフィルタなどによるデータ同化などが採用される。典型的なLIB電極構成であるLi(Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>)O<sub>2</sub>-グラファイト系の劣化予測に物理モデルを適用した例を図3に示す。正極活物質の構造転移層は、被覆率増加を1次の反応式で表現している。負極SEI膜は2種類(無機系, 有機系)を想定し、成長速度は線形化したButler-Volmer式を用いることにより、成長駆動力が副反応過電圧に比例するとしている。また、活物質粒子間または集電箔界面における亀裂進展速度は、Paris則に基づく経験式を採用している。

このようなアプローチは、経験則に比べて高精度な予測が期待できるが<sup>2)</sup>、あらかじめ劣化要因を仮定する必要がある。このため、支配因子を適切にモデル化できているかが鍵となる。とくに、劣化現象が複雑である場合や要因が十分に明らかでない場合は、モデル化自体が難しい。

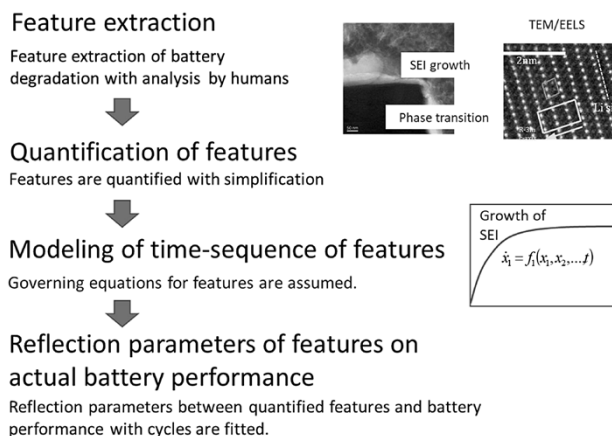


図2 物理モデルによる劣化モデリング方法の例  
Fig.2 Typical degradation modeling methods using physics-based models

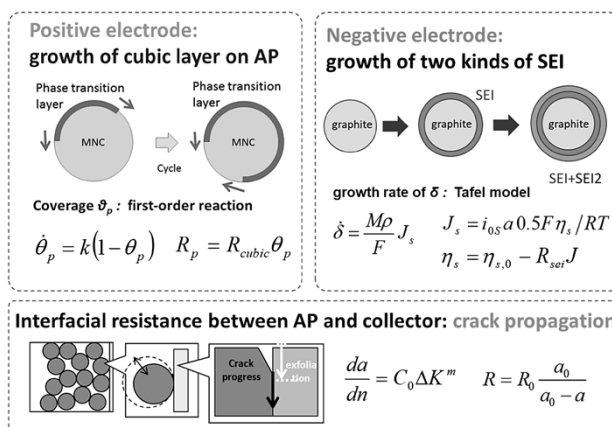


図3 Li(Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>)O<sub>2</sub>-グラファイト系における物理モデルの例  
Fig.3 Typical physics-based model in Li(Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>)O<sub>2</sub>-graphite system

## 2. データ駆動型ホワイトボックスモデル

当社は最近、新たな劣化予測技術を開発した。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技術である。本技術では、劣化状態の特徴量が分析画像から抽出・選択されるため、客観的な劣化要因の推定を行いつつ、精度の高い予測ができることが大きな利点である。

解析の流れを図4に示す。データ駆動型モデルには、充放電電圧のサイクル・時間変化データのみから構築する方法がある。しかしながら、ここでは同じデータ駆動型であっても電極のSEM画像を入力値としていることから、電池内部の劣化現象の特徴獲得が期待できるホワイトボックスのアプローチとなる。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)に対して深層学習による特徴量抽出とその可視化を行い、劣化画像で注目すべき特徴箇所を特定する。また、画像処理によりこれらの特徴箇所が示す統計的劣化特徴量をスコア化する。後述するように、被膜領域やき裂領域の面積、厚さ、最大細

孔径などがスコアの候補となる。

- ② これらスコアが時間とともにどのように変化するかを、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。

## 2.1 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、評価用電池セル（試作コインセル）を作製した。電極および電解液は可能な限り一般的な材料とし、正極には  $\text{Li}(\text{Ni}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3})\text{O}_2$ 、負極には  $\text{SiO}$ -グラファイト、電解液には  $1\text{M LiPF}_6$  (EC : DEC=1 : 1) を採用した。なお、コインセルは  $\phi 10\text{ mm}$ 、容量  $4.8\text{ mAh}$  とした。

つぎに、初期充放電の後、温度  $25^\circ\text{C}$ 、上限電圧  $4.0\text{ V}$ 、下限電圧  $3.0\text{ V}$ 、充放電レート  $1\text{C}$  条件において充放電サイクル試験を行い、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  $\text{SiO}$  電極の断面 SEM 観察を行った。最大サイクル数は  $100$  とした。

## 2.2 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）の負極断面 SEM 像を  $50\ \mu\text{m}$  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（Convolutional Neural Network, 以下 CNN という）による劣化状態分類モデルを構築した。CNN 特徴量抽出器は、ImageNet  $1000$  クラス分類で実績のある VGG16<sup>5)</sup> をベースとし、全結合層および一つ前のブロックのみを対象にニューラルネットワークの重みを独自に調整した。なお、得られた  $4096$  次元の特徴量ベクトルを用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。これらの流れを図 5 に示す。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により、分類に寄与する画素を可視化した<sup>6)</sup>。

このようにして得られたマスク像では、比較的広い空隙や活物質周囲の析出膜、細かい空隙領域で高い反応を示しており（図 6）、これらの領域が劣化を特徴付けて

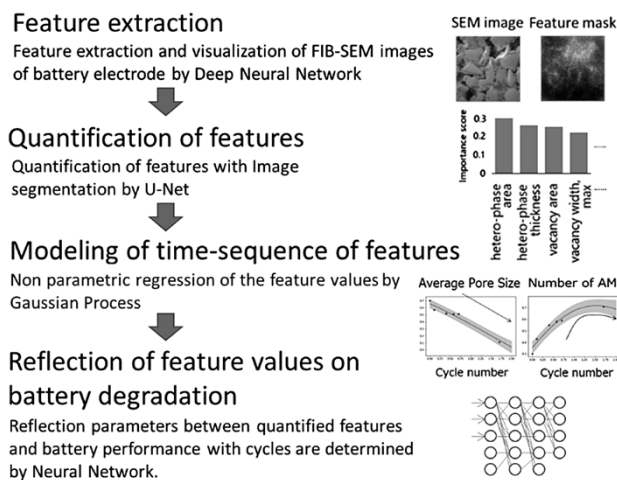


図 4 分析画像を用いたデータ駆動型劣化モデリングの流れ  
Fig.4 Proposed procedure for data-driven and white box approaches

いと解釈できる。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、深層学習に基づくセグメンテーション方法である U-net<sup>7)</sup> を用いた。この手法により、断面 SEM 像の特徴箇所において見られる析出膜や空隙領域を識別するために、各劣化状態の画像に対して領域分けを行った。この際、熟練の SEM 技術者によるアノテーションを実施し、教師データとした。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、これらを劣化特徴量と定義した。なお、ここでは活物質、バインダー・導電助剤、空隙、活物質表層の 4 つの領域にセグメンテーションを行った（図 7）。

## 2.3 劣化特徴量のサイクル変化

2.2 節では、数値化した劣化特徴量の時間変化に対して、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電池容量の劣化挙動を予測した。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により、関数形状を規定することなくデータの特長から適応的に回帰・予測を行う方法である。本解析では式 (1) で与えられるガウシアンカーネルを採用した。

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

ここに、 $x, x'$  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。

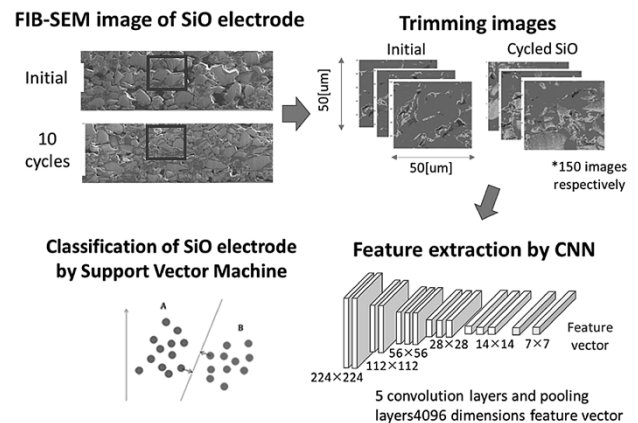


図 5 深層学習を用いた FIB-SEM 像の特徴量抽出・分類の流れ  
Fig.5 Flow of feature extraction and classification of FIB-SEM images using deep learning

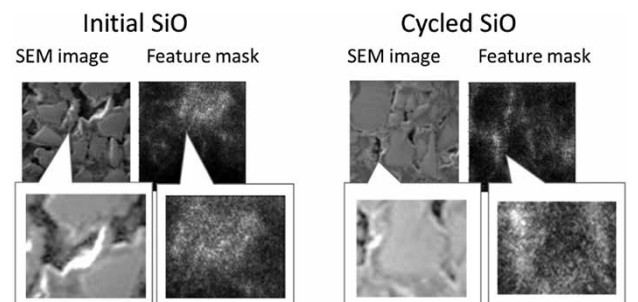


図 6 初期品および劣化品の断面 SEM 像における特徴箇所の可視化  
Fig.6 Visualization of feature locations in cross-sectional SEM images of initial (left) and degraded (right)  $\text{SiO}_x$  electrodes

劣化特徴量のサイクル変化の回帰例を図8(左図)に示す。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、活物質個数それぞれのサイクル変化を挙げている。実測の電池容量は単調に減少しているいっぽうで、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。例えば、活物質表層の厚さはサイクルとともに必ずしも単調増加していかないことがわかる。すなわち、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。

回帰した各劣化特徴量の組み合わせが、電極の劣化量に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)とを反映パラメータによって対応付けた(図8中央図)。本解析では、各劣化特徴量を入力とし、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た。ただし、ここでは反映パラメータはサイクル数に依存しないと仮定した。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うえで回帰を行った。図8(右図)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わかる。

## 2.4 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、各劣化特徴量の寄与度を分析した。各サイクルの容量損失における各因子の寄与を図9(a)に示す。活物質平均面積や活物質密度などの活物質サイズに起因する特徴量や、空隙の細孔径が高い値を示し、これらの寄与が大きいと考えられる。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を図9(b)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、より細かい空隙が増加していることが確認できる。したがって、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になる。

このように、本アプローチでは電極のSEM像を入力とすることにより、メカニズムが十分に明らかでない現象に対する劣化予測が可能となった。また、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も意義深い。

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)を含めることによってさらなるモデルの高度化が期待される。いっぽう、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

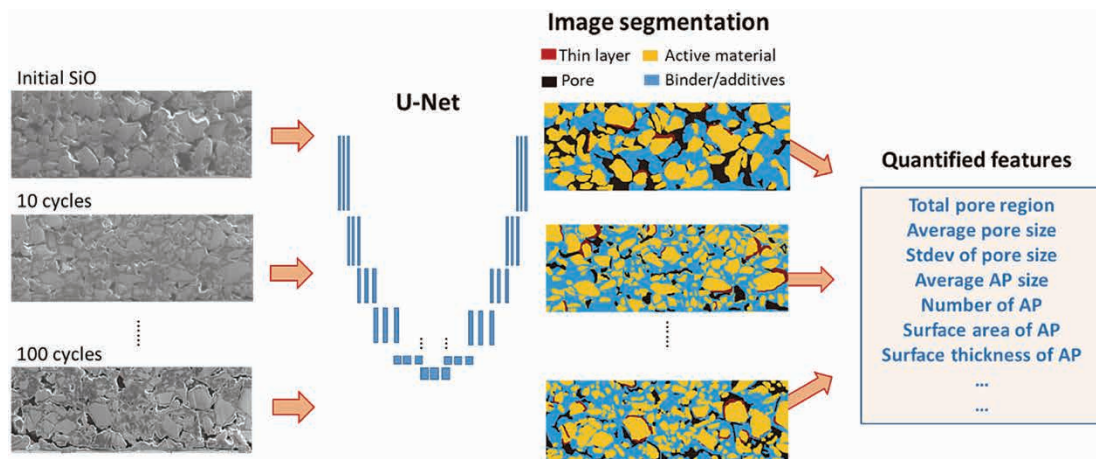


図7 U-netを用いたSiO<sub>x</sub>のFIB-SEM像のセグメンテーション  
Fig.7 Segmentation of FIB-SEM images of SiO<sub>x</sub> using U-net

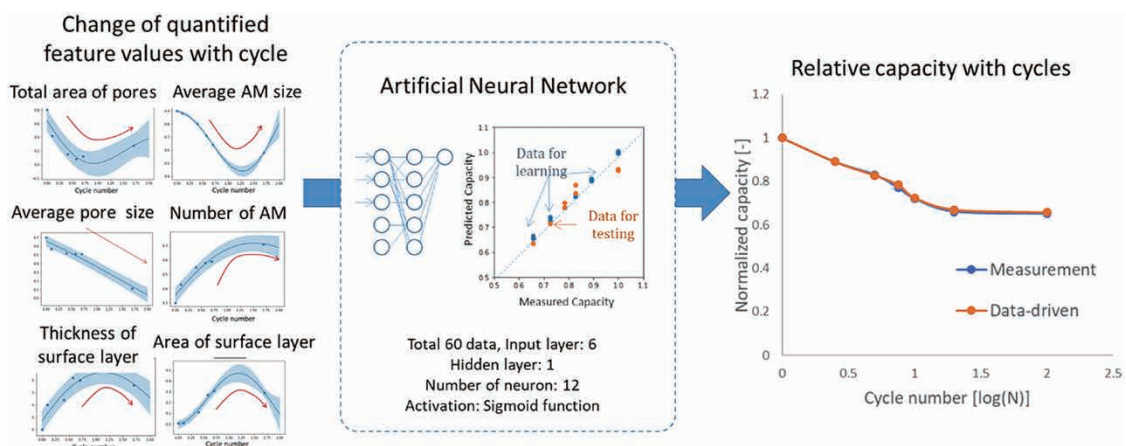


図8 劣化特徴量のサイクル変化の回帰例  
Fig.8 Example of regression of cycle change in degradation features

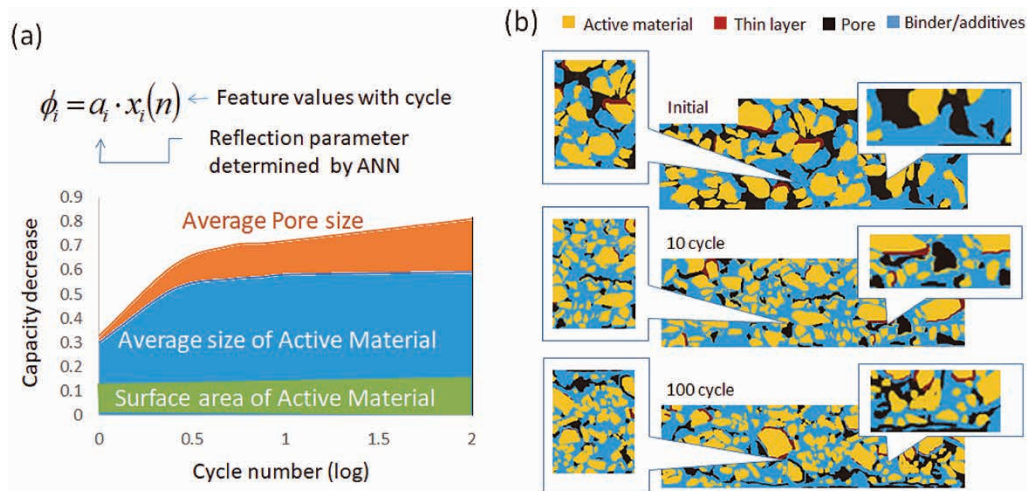


図9 実測への反映パラメータのサイクル変化(a), 初期, 10サイクル後および100サイクル後における負極断面のセグメンテーション画像(b)  
**Fig.9** Cycle change of parameters reflected in actual measurement (a), and segmented FIB-SEM images at initial, after 10 cycles and after 100 cycles (b)

び数の確保が課題となる。また、ここで抽出される特徴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。

**むすび** = 本稿では、リチウムイオン電池の劣化予測技術について、従来型の物理モデルや最近注目されている機械学習・深層学習を用いたデータ駆動型モデルを紹介した。新たに開発したデータ駆動型ホワイトボックスモデルでは現象が十分に明らかでなくてもモデル化が可能であり、劣化予測精度において高い優位性を持つこと、また構築されたモデルを考察することにより、隠れた現象解明にも有用であることを示した。これらのモデルはそれぞれに特徴があり、目的や現象に対する知見に応じて使い分けることが重要と考える。

今後は、データからスパース行列により支配方程式を推定するSINDy法<sup>8)</sup>などを活用することにより、外挿領域を含めた高精度予測技術を構築する予定である。

#### 参考文献

- 1) G. Ning et al. Journal of Power Sources. 2003, Vol.117, p.160-169.
- 2) Y. Takagishi et al. International Journal of Automotive Engineering. 2017, Vol.8, No.3, p.143-148.
- 3) R. Richardson et al. Journal of Power Sources. 2017, Vol.357, p.209-219.
- 4) 高岸洋一ほか. 第59回電池討論会講演要旨集. 2018-11-27/29, 電気化学会, p.209.
- 5) D. Smilkov et al. SmoothGrad: removing noise by adding noise. arXiv.org e-print archive. 2017, 1706.03825, <https://arxiv.org/abs/1706.03825>. (参照 2020-12-14).
- 6) K. Simonyan et al. Very Deep Convolutional Networks for Large-Scale Image Recognition. arXiv.org e-print archive. 2015, 1409.1556. <https://arxiv.org/abs/1409.1556>. (参照 2020-12-14).
- 7) O. Ronneberger et al. U-Net: Convolutional Networks for Biomedical Image Segmentation. arXiv.org e-print archive. 2015, 1505.04597. <https://arxiv.org/abs/1505.04597>. (参照 2020-12-14).
- 8) S. L. Brunton et al. Acad. Sci. U.S.A. 2016, Vol.113, p.3932-3937.