

博士論文

リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断の研究
(Research of the efficiency degradation diagnosis of lithium-ion batteries)

2021年3月

立命館大学大学院理工学研究科
電子システム専攻博士課程後期課程

有馬 理仁

立命館大学審査博士論文

リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断の研究
(Research of the efficiency degradation diagnosis of lithium-ion batteries)

2021年3月

March 2021

立命館大学大学院理工学研究科

電子システム専攻博士課程後期課程

Doctoral Program in Advanced Electrical, Electronic and Computer Systems

Graduate School of Science and Engineering

Ritsumeikan University

有馬 理仁

ARIMA Masahito

研究指導教員：福井 正博教授

Supervisor : Professor FUKUI Masahiro

目次

内容梗概.....	I
関連発表論文等.....	III
第1章 序論.....	1
1.1 背景.....	1
1.2 リチウムイオン蓄電池の劣化.....	9
1.3 バッテリーアグリゲーションの運用経済性.....	11
1.4 リチウムイオン蓄電池の劣化診断技術.....	14
1.5 本研究の目的.....	19
1.6 各章の概要.....	19
第2章 効率劣化診断による運用経済性改善.....	21
2.1 はじめに.....	21
2.2 差電圧指標を用いた充放電エネルギーの推定.....	24
2.3 運用経済性の改善効果.....	34
2.4 まとめ.....	37
第3章 実用的な運用経済性改善手法.....	38
3.1 はじめに.....	38
3.2 充放電電流を要素に持つ蓄電池劣化モデル.....	39
3.3 運用経済性改善シミュレーション.....	58
3.4 まとめ.....	66
第4章 現実的な蓄電池劣化モデル生成法.....	67
4.1 はじめに.....	67
4.2 ニューラルネットワークによる蓄電池劣化モデル生成.....	70
4.3 MGFFDによる蓄電池劣化モデル生成.....	83
4.4 まとめ.....	93
第5章 結論.....	95
5.1 本論文の成果の概要.....	95
5.2 本論文の成果の要点.....	98
5.3 今後の発展性.....	98
記号および略号.....	100
共通条件.....	105
参考文献.....	106
謝辞.....	118

内容梗概

本論文は、リチウムイオン蓄電池の劣化による経時的な充放電エネルギー効率低下に注目し、その診断方法すなわち効率劣化診断を提案する。また、リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断がバッテリーアグリゲーションの運用経済性向上につながることを示す。

第1章では本研究の背景と目的について述べる。気候変動抑制に向けた温室効果ガス排出量削減のため、さらなる再生可能エネルギー導入が求められている。特に太陽光発電大量導入のための基盤技術として、バッテリーアグリゲーションおよび定置型リチウムイオン蓄電池が期待されている。一方、リチウムイオン蓄電池は劣化によって充放電エネルギー効率が低下し、バッテリーアグリゲーションの運用経済性を低下させる事が予想される。バッテリーアグリゲーションの運用経済性低下を防ぐには個々の定置型リチウムイオン蓄電池の充放電エネルギー効率を推定する効率劣化診断技術が必要であるが、従来の報告事例は電池容量を推定する技術がほとんどであり、加えて劣化による充放電エネルギー効率低下はほとんど注目されていなかった。このことは、リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断の新規性を示す。以上を踏まえた本研究の目的は、リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断手法を構築することと、そのバッテリーアグリゲーション運用経済性改善効果を示すことである。

第2章では、バッテリーアグリゲーション運用中にバッテリーマネジメントシステムから抽出可能な差電圧指標を用いて蓄電池劣化モデルを生成し、これを用いた効率劣化診断手法を提案する。次にそこから運用経済性推定モデルを構築するとともに、バッテリーアグリゲーション運用経済性改善効果を解明する。蓄電池劣化を考慮した運用経済性改善提案は革新的であり、論文誌での採択がされている。これは、本研究の目的の有効性を示すものである。

第3章では、効率劣化診断の蓄電池劣化モデルに関して、充放電電流に対する一般化を検討する。満充電容量、開回路電圧、内部抵抗に係る既報のモデル式を採用し、その各係数を差電圧指標から推定する。この蓄電池劣化モデル生成法により効率劣化診断が精度よく実施できることを示す。次に、この蓄電池劣化モデル生成法を適用し、太陽光発電余剰電力対策を行う具体的なバッテリーアグリゲーションモデルを想定して、運用経済性改善シミュレーションを実施する。効率劣化診断結果に基づいた最適運用を行うことで、バッテリーアグリゲーションの充放電エネルギー効率と収益が改善することを定量的に示す。

第4章では、第3章で提案した蓄電池劣化モデル生成法について、教師データの観点から課題を抽出し、現実のバッテリーアグリゲーションに即した手法を提案する。検討手法の一つは教師データ低減を狙いとしたニューラルネットワークである。ここでは汎化能力を利用した教師データ量低減を狙う。もう一つの検討手法は教師無し学習を狙いとし、画像処理技術 GFFD からリチウムイオン蓄電池用に修正した MGFFD である。ここでは特

にリチウムイオン蓄電池の開回路電圧に係る高速・高精度な運用追従学習ができることを示す。この開回路電圧の MGFFD 学習に関しては論文誌での採択がされている。これは MGFFD による蓄電池劣化モデル生成の先進性と有効性を示すものである。

第 5 章では本論文をまとめる。各蓄電池劣化モデル生成法を、それぞれの特徴を活かして有機的に活用することで、リユースバッテリーを含む様々な種類・劣化状態のリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断が可能になると考えられる。この効率劣化診断によってバッテリーアグリゲーションの運用経済性を向上し、再生可能エネルギー導入拡大を支援して気候変動対策に貢献する事が期待される。

関連発表論文等

論文誌等採録論文

- [1] 有馬理仁, 林磊, 福井正博, “リチウムイオン蓄電池の経済運用に向けた開放電圧のフリーフォーム変形学習の提案,” 電子情報通信学会和文論文誌 B, vol.J104-B, no.3, 2021年3月 (in press).
- [2] 林磊, 福井正博, 有馬理仁, “リチウムイオン蓄電池の同時かつ安定的な回路パラメータと残量の推定法,” 電子情報通信学会和文論文誌 B, vol.J104-B, no.3, 2021年3月 (in press).
- [3] 林磊, 福井正博, 有馬理仁, 鷹羽浄嗣, “電流観測ノイズを考慮した高精度蓄電池残量推定システム,” 電子情報通信学会和文論文誌 B, vol.J104-B, no.1, pp.1-9, 2021年1月.
- [4] 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, vol.39, No.3, pp.11-20, 2018年5月.

査読付国際会議における発表

- [1] S. Ota, L. Lin, M. Arima, and M. Fukui, "An open circuit voltage estimation for lithium-ion batteries using Kalman filter," in *Proc. 23rd Workshop on Synthesis and System Integration of Mixed Technologies*, (Online), Japan, Mar., 2021.
- [2] M. Nakajima, L. Lin, M. Arima, and M. Fukui, "A degradation simulator for assembled lithium-ion batteries," in *Proc. International Battery Association 2020*, Bled (Online), Slovenia, Nov., 2020.
- [3] R. Godine, M. Nakajima, L. Lin, M. Arima, and M. Fukui, "Thermal simulation with updation of thermal resistance of air," in *Proc. International Technical Conference on Circuits/Systems, Computers and Communications*, Aichi (Online), Japan, July, 2020.
- [4] Y. Tanaka, H. Katsuragawa, H. Fujii, K. Kuraya, M. Arima, and M. Fukui, "Modeling and verification of energy loss on curved roads," in *Proc. International Technical Conference on Circuits/Systems, Computers and Communications*, Aichi (Online), Japan, July, 2020.
- [5] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, "Case study of photovoltaic energy surplus absorption by charging Lithium-ion batteries considering charge-discharge energy efficiency," in *Proc. 8th IEEE International Conference on Consumer Electronics Berlin*, Berlin, Sep., 2019.

- [6] R. Godine, M. Nakajima, L. Lin, M. Arima, and M. Fukui, "An efficient thermal analysis system for assembled battery management," in *Proc. 14th International Conference on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics*, Wicklow, Ireland, July, 2019.
- [7] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, "Study of charge–discharge energy prediction using neural networks for improving the operational economic efficiency of lithium-ion battery aggregation," in *Proc. 235th ECS Meeting*, Dallas, USA, May, 2019.
- [8] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, "Three degradation parameters estimation of a LIB module using single indicator for in-situ charge-discharge energy prediction," in *Proc. IEEE International Communications Energy Conference*, Torino, Italy, Oct., 2018.
- [9] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, "An algorithm of charge-discharge curve estimation and full charge capacity correction for lithium-ion battery module ," in *Proc. the 19th International Meeting on Lithium Batteries*, Kyoto, Japan, June, 2018.

国内学会・シンポジウム等における発表

- [1] 田中雄大, 倉谷和輝, 林磊, 有馬理仁, 福井正博, "カーブ路の表現方法とカーブ走行のエネルギー損失についての検討実験," ITS シンポジウム, 松山市総合コミュニティセンター, 愛媛, 2020 年 12 月.
- [2] 林磊, 有馬理仁, 福井正博, "カルマンフィルタを用いたリチウムイオン蓄電池の OCV 推定手法の一検討," 第 61 回電池討論会, 大阪 (オンライン), 2020 年 11 月.
- [3] 倉谷和輝, 藤井春弥, 林磊, 有馬理仁, 福井正博, "モーター特性を考慮した EV カートモデル設計と加速条件最適化実験評価," ITS シンポジウム, 石川県地場産業振興センター, 石川, 2019 年 12 月.
- [4] 有馬理仁, 林磊, 福井正博, "リチウムイオン蓄電池の劣化診断による選択的運用から得られる太陽光発電余剰電力活用の経済性向上," 電気学会 D 部門大会, 長崎大学, 長崎, 2019 年 8 月.
- [5] 中嶋基, Godine Raja Sekhar, 林磊, 有馬理仁, 福井正博, "リチウムイオン蓄電池劣化シミュレータを用いた電池パックのセル間初期ばらつきと劣化の関係に対する一検討," 電子情報通信学会 回路とシステム研究会(CAS), ホテルアトールエメラルド宮古島, 沖縄, 2018 年 12 月.
- [6] 倉谷和輝, 藤井春弥, 林磊, 有馬理仁, 福井正博, "EV 用モータモデルの構築とキャリブレーションによる高精度化の一検討," 電子情報通信学会 回路とシステム研究会 (CAS), ホテルアトールエメラルド宮古島, 沖縄, 2018 年 12 月.

- [7] 有馬理仁, 林磊, 福井正博, "リチウムイオン蓄電池モジュールの充放電特性を特徴づけるモデル式係数ベクトルの導出," 第 59 回電池討論会, グランキューブ大阪, 大阪, 2018 年 11 月.
- [8] 有馬理仁, 林磊, 福井正博, "ニューラルネットワークを用いたリチウムイオン蓄電池の劣化診断の一検討," 電子情報通信学会 回路とシステム研究会(CAS), ハートピア熱海, 静岡, 2018 年 11 月.
- [9] 藤井春弥, 林磊, 有馬理仁, 福井正博, "EV カート用モデル設計と加速条件最適化実験の一試行," 電子情報通信学会 回路とシステム研究会(CAS), 東北大学, 宮城, 2018 年 10 月.
- [10] 有馬理仁, 林磊, 福井正博, "リチウムイオン蓄電池モジュールの使用状態での劣化診断の一手法," 電子情報通信学会 回路とシステム研究会(CAS), 北海道大学, 北海道, 2018 年 6 月.
- [11] 有馬理仁, 鬼木直樹, "過渡的差電圧法を用いたリチウムイオン電池のリアルタイム劣化診断の検討," 平成 28 年度神奈川県ものづくり技術交流会, 神奈川県産業技術センター, 神奈川, 2016 年 10 月.
- [12] 有馬理仁, 鬼木直樹, "過渡的差電圧法による蓄電池のリアルタイム充放電曲線推定の検討," 平成 28 年電気学会電力・エネルギー部門大会, 九州工業大学, 福岡, 2016 年 9 月.
- [13] 有馬理仁, 鬼木直樹, "リチウムイオン電池を用いた蓄電システムのリアルタイム劣化診断の検討," 第 35 回エネルギー・資源学会研究発表会, グランキューブ大阪, 大阪, 2016 年 6 月.
- [14] 有馬理仁, 鬼木直樹, "運用中のバッテリーモジュールに対するリアルタイム劣化診断の検討," 平成 28 年電気学会全国大会, 東北大学, 宮城, 2016 年 3 月.
- [15] 有馬理仁, 鬼木直樹, 須永直樹, 権藤僚, "蓄電システムの制御・監視データを用いた劣化診断法の検討," 平成 27 年度神奈川県ものづくり技術交流会, 神奈川県産業技術センター, 神奈川, 2015 年 10 月.
- [16] 有馬理仁, 権藤僚, "蓄電システムの制御・監視データを用いた劣化診断の理論的背景に関する考察," 平成 27 年電気学会電力エネルギー部門大会, 名城大学, 愛知, 2015 年 8 月.
- [17] 有馬理仁, 権藤僚, 深沢保, "リチウムイオン電池を用いた蓄電システムの制御・監視データを用いた劣化診断の検討," 平成 27 年電気学会全国大会, 東京都市大学, 東京, 2015 年 3 月.
- [18] 有馬理仁(招待), "産業用機器向けリチウムイオン電池製品の開発、および各種性能評価," 第 5 回かながわ環境関連産業ネットワーク 創蓄省エネフォーラム, さがみはら産業創造センター, 神奈川, 2014 年 2 月.

- [19] 有馬理仁(招待), “産業機器向けリチウムイオン電池製品の開発、及び安全性・特性評価,” 愛知県主催平成 25 年度第 1 回二次電池セミナー, 愛知県技術開発交流センター, 愛知, 2013 年 10 月.

著書

- [1] 有馬理仁(単著), “低炭素社会とバッテリーアグリゲーション ～リチウムイオン蓄電池の寿命劣化と経済性～,” シーエムシー・リサーチ, 2020 年 3 月.
- [2] 有馬理仁(分担執筆), “リチウムイオン電池の分析、解析と評価技術 事例集 ー劣化、発熱、ガス、内部状態、反応メカニズムー,” 5 章 1 節, 技術情報協会, 2019 年 11 月.
- [3] 有馬理仁(分担執筆), “車載用 LIB の急速充電性能・耐久性と市場,” 第 4 章, シーエムシー・リサーチ, 2019 年 4 月.
- [4] 有馬理仁(分担執筆), “リチウムイオン電池における 高容量化・高電圧化技術と安全対策 ～破裂・爆発・膨張・異臭など, 国内外での事故事例に学ぶ傾向と対策～,” 10 章 4 節, 技術情報協会, 2018 年 10 月.
- [5] 有馬理仁(分担執筆), “リチウムイオン二次電池 ～高容量化・特性改善に向けた部材設計アプローチと評価手法～,” 2 章および 6 章 2 節, 情報機構, 2017 年 8 月.
- [6] 有馬理仁(分担執筆), “EV に最適なバッテリーマネジメント技術と市場,” 2 章, シーエムシー・リサーチ, 2017 年 5 月.
- [7] 有馬理仁(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,” 7 章 2 節, サイエンス&テクノロジー. 2016 年 10 月.

第1章 序論

1.1 背景

20世紀初頭以降の世界の平均地上気温は上昇トレンドにある[1]。この現象は地球温暖化と呼ばれ、さらなる気候変動や海面上昇など地球環境への重大な影響を派生し得る。IPCCは、”人間による影響が20世紀半ば以降に観測された温暖化の支配的な原因であった可能性が極めて高い”[2]と結論付けており、その主要な原因は温室効果ガスの排出と大気濃度上昇であると考えられている。温室効果ガスには二酸化炭素(CO₂)・メタン(CH₄)・亜酸化窒素(N₂O)・ハイドロフルオロカーボン類(HFCs)・パーフルオロカーボン類(PFCs)・六フッ化硫黄(SF₆)があり、中でも図1-1に示すように、1990年以降一貫して二酸化炭素の排出割合が多い。実際に日本でも季節変動はあるが年々二酸化炭素濃度が増加する傾向にある(図1-2)。そのため、二酸化炭素排出量低減が気候変動対策において重

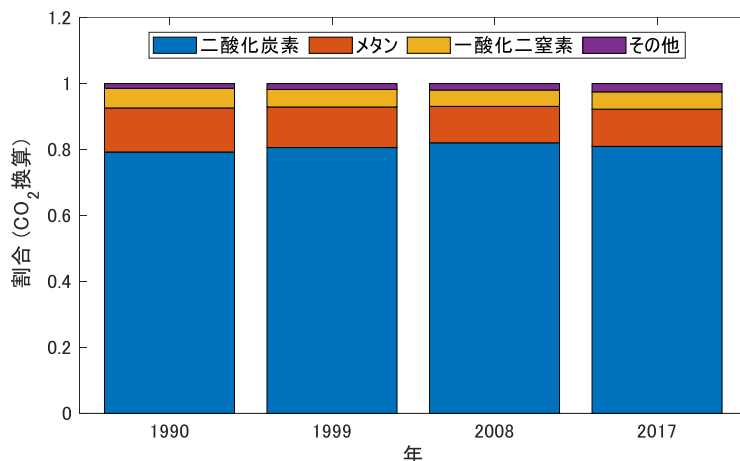


図 1-1 世界の温室効果ガス排出割合[3]

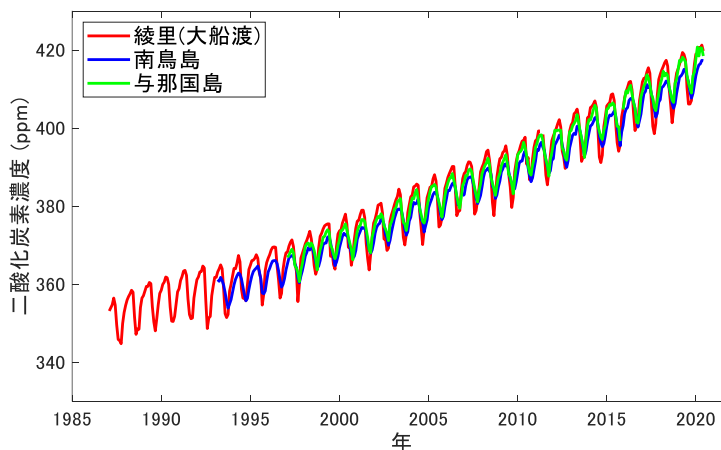


図 1-2 日本の二酸化炭素濃度の経年変化[4]

要な課題であり、いわゆる「低炭素化」あるいは「脱炭素化」と呼ばれる取組みが推進されてきた。

この二酸化炭素排出量を分野別に見ると、図 1-3 に示すように 8 割近くを一貫してエネルギー分野が占めている。従って、気候変動対策としてエネルギー分野における二酸化炭素排出量削減の重要度と必要性が特に高いと考えられる。

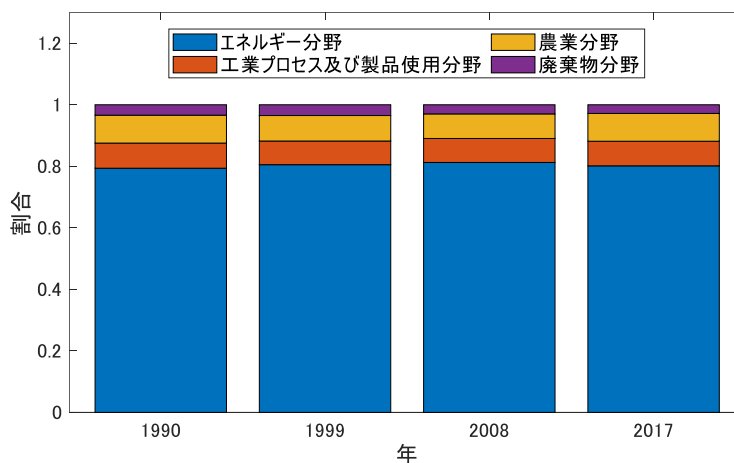


図 1-3 世界の分野別二酸化炭素排出量[3]

エネルギー分野の二酸化炭素排出量は年々減少傾向にあるが、産業別・業種別では電力事業を含むエネルギー産業の割合が一貫して高い(図 1-4)。現在エネルギー産業においては二酸化炭素排出量低減の取組が様々に進められており、その中で特に注目されている技術の一つは再生可能エネルギーの導入である。

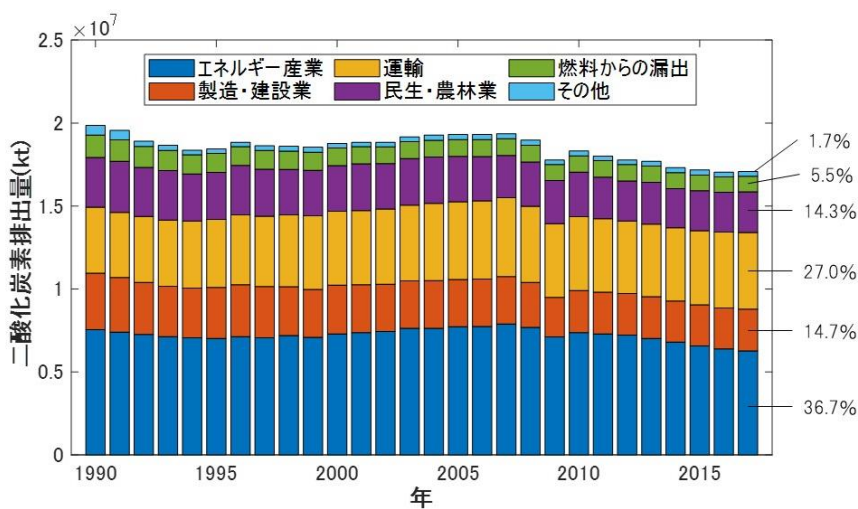


図 1-4 世界のエネルギー分野の産業別・業種別二酸化炭素排出量[3]

資源として有限で大気中の二酸化炭素を増加させる化石燃料利用と異なり，再生可能エネルギーは自然界に常に存在する，大気中の二酸化炭素を増加させないエネルギーである。また再生可能エネルギーにはバイオマス火力発電のような，利用中に発生する二酸化炭素の由来が近年の光合成で生産された天然物である，いわゆるカーボンニュートラルな手法も含まれている。一方，原子力発電は二酸化炭素を排出しないが，燃料資源が有限であるため再生可能エネルギーに含まれない。他方，従来発電技術として広く利用されている大規模水力発電は再生可能エネルギーに分類される。電力産業においては二酸化炭素排出量削減に向けた新規な再生可能エネルギー技術の開発が求められ，日本では従来の大規模水力発電を除く再生可能エネルギーを指す概念として「新エネルギー」の呼称が使われている[5]。各種発電方法と二酸化炭素排出の有無，再生可能エネルギーおよび新エネルギーの分類を図 1-5 に示す。

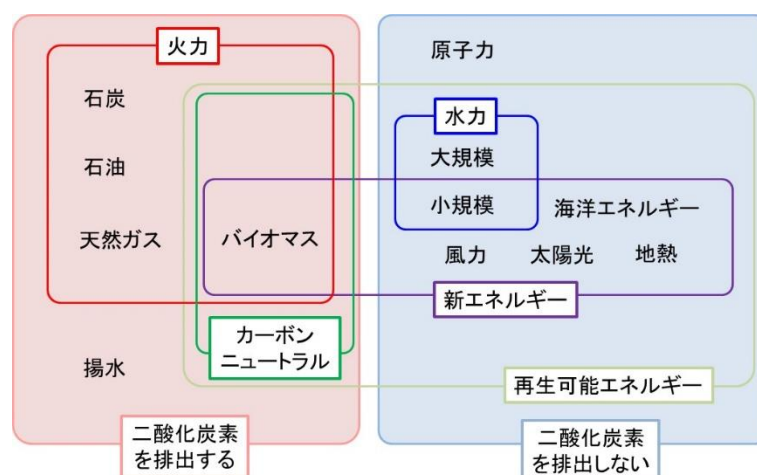


図 1-5 発電方法と二酸化炭素排出の有無，および再生可能エネルギー・新エネルギーの分類

図 1-6 に示すように，新エネルギーの導入量は年々増加しており，その増分は主に風力発電と太陽光発電の伸びが担っている。主要な新エネルギーは風力発電であり，2019 年時点では新エネルギーの中で最大の導入容量となっているが，近年の太陽光発電導入容量の伸びは大きく，じきに風力発電の導入容量に追いつく勢いである。一方，新エネルギー導入量が多い国の各種新エネルギー導入割合をみると，多くの国では風力発電と太陽光発電がバランス良く導入されているのに対して，日本では太陽光発電が 9 割程度導入された特異な状況となっている(図 1-7)。これは日本の国土が台風などの気象条件を理由に風力発電に適さない環境にあると考えられていること，および太陽光パネルの低価格化や固定価格買取制度(FIT: Feed In Tariff)等の政策によって太陽光発電の導入量が急激に増加したこと，などが理由として考えられる。

太陽光発電の主要な特性として，日照変化による出力変動と，昼間のみ発電できる時間帯偏在性が挙げられる。晴れた日には，太陽光発電は太陽の南中時に発電量がピークとな

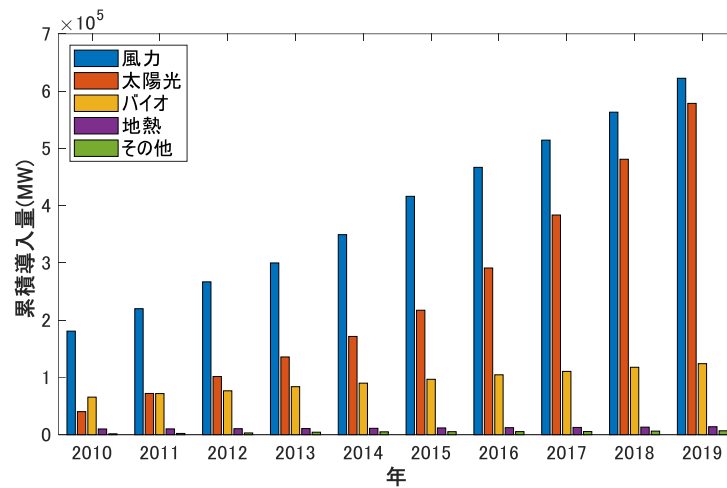


図 1-6 世界の新エネルギーの累積導入量推移[6]

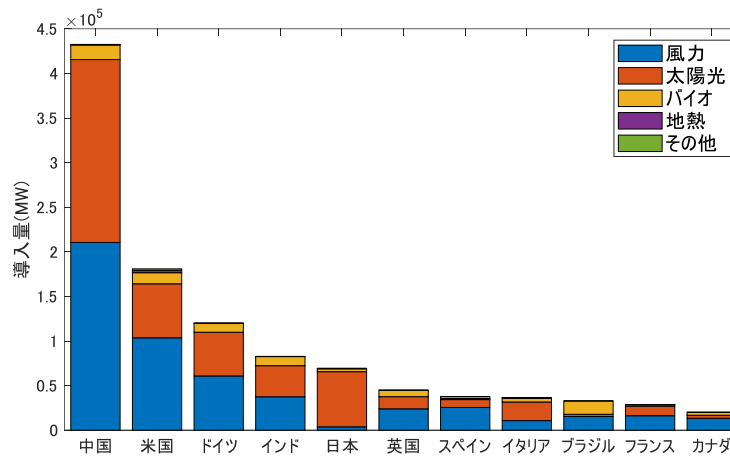


図 1-7 主要各国の新エネルギー導入状況(2019年)[6]

り、そこから日の出および日没に向かって徐々に発電量が低下する。つまり、時間帯と発電量のグラフを描くと山型になる。従って、太陽光発電電力が導入されない時と比べて、導入時は電力の実質的な日負荷曲線を逆さの山型に押し下げることになる。この現象が2020年に向けて米国カリフォルニア州でより深刻に発展していく事が California ISO によって2013年に予測された[7]。これは、元の日負荷曲線から太陽光発電電力を差引いた実質日負荷曲線の形状が、アヒルを横から見たような形状であることから duck curve と呼ばれている。日本では九州エリアにおいて、電力需要に対する太陽光発電導入割合が高くなっている。例えば2020年2月23日(日曜日)の九州のエリア需要の日負荷曲線と、そこから太陽光発電電力を差引いた実質日負荷曲線は図 1-8 のようになっており、まさに前述の duck curve の状況が出現していた。

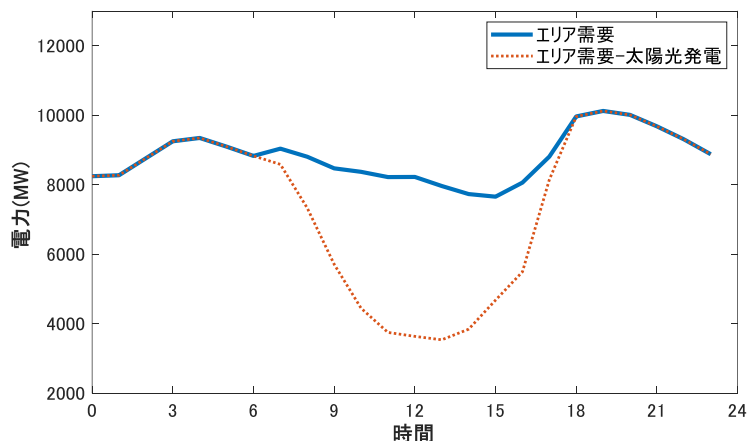


図 1-8 2020年2月23日(日曜日)の九州エリア日負荷曲線[8]

九州エリアでは 2018 年 10 月から九州本土における太陽光発電・風力発電の出力制御 [9]が実施されている。電力ネットワークでは同時同量と呼ばれる原則があり、常に発電量と電力需要量を同量に維持する必要がある。同時同量が維持できなくなると電力ネットワークの周波数や電圧が変動・不安定化し、これが制御の限界を超えた場合には広域大停電の発生につながる。太陽光発電・風力発電の導入による電力供給量の増加に対しては、一般に火力発電などの応答速度が速い発電機の出力を絞ることによって対応する。しかし電力供給量増加が発電機の下げ代と呼ばれる出力減調節の限界値を超える場合は、一部の太陽光発電・風力発電の出力を遮断して電力ネットワークへの電力流入を防ぐ。これを出力制御と呼ぶ。春季と秋季は空調機を中心とした電力需要が少なくなる [10] ことに加え、太陽光発電にとって太陽高度と気温の条件が年間を通じて中程度に良好であり、発電量が年間のピークにかなり近い [11]。このため春季と秋季は特に出力制御を実施する可能性が高くなる。実際、2018 年 10 月から 2020 年 8 月までの九州エリアでは、主に春季と秋季に出力制御が実施されてきた。ただし 2019 年末から 2020 年始では比較的電力需要がある冬季においても出力制御実績があり、徐々に時季が拡大している傾向が出てきている (図 1-9)。このように出力制御された電力はすなわち、その瞬間に電力需要家が消費しきれなかった余剰電力と考える事ができる。

2020 年 2 月 23 日(日曜日)の九州エリアの電力需給状況を図 1-10 に示す。この日は各時間帯の電力需要の 40~55 %が原子力発電により供給され、太陽光発電を除いた総発電量は夜間も含めて常に電力需要を上回っていた。太陽光発電・風力発電の出力制御が実施されていない時間帯の発電の余剰分は中国九州間連系線を通じて中国エリアに出力された。日中に太陽光発電が出力し始めると、火力発電所の出力を絞って総発電量増加に対応したが、この日は火力発電所出力の調整だけでは対応しきれなかったため、午前 8 時台から午後 3 時台まで太陽光発電と風力発電の出力を抑制する出力制御を行った。図 1-10 におい

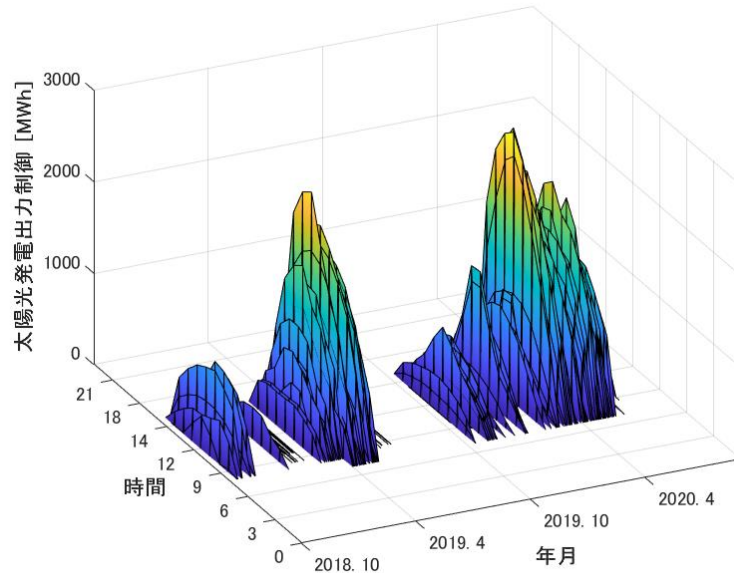


図 1-9 2018年10月から2020年8月の九州エリアでの太陽光発電出力制御実績[8]

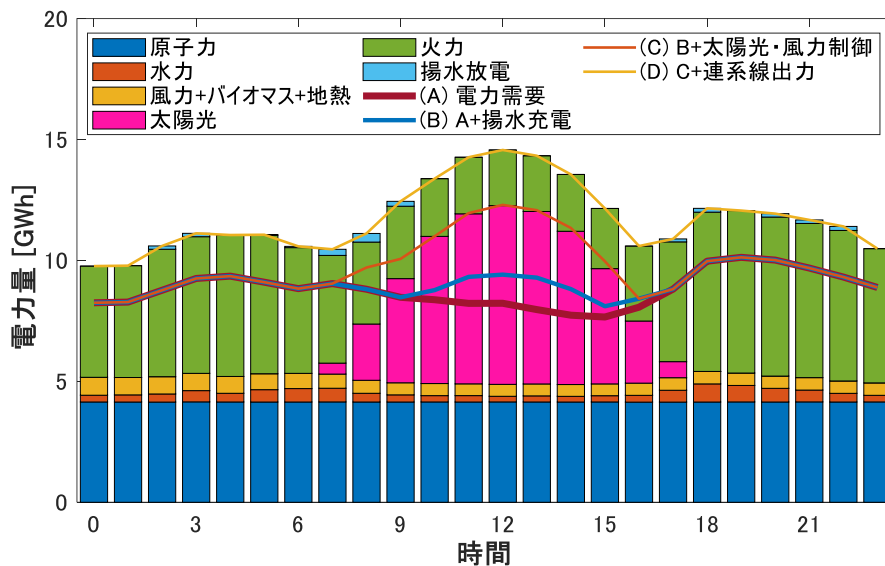


図 1-10 2020年2月23日(日)の九州エリア需給状況[8]

では、(B)の青線と(C)の橙線とが囲む領域が出力制御された太陽光発電・風力発電電力である。風力発電電力は元々少ないため、出力制御電力の94.5%以上は太陽光発電の出力制御によるものである。また、(A)の赤紫線と(B)の青線が囲む領域は揚水発電所における水のポンプアップによる充電に使用した電力を示している。この日の九州エリアでは12時台に2803MWhの最大出力制御が実施された。また、揚水発電所の充電電力も太陽光発電・風力発電の余剰電力として考慮すると、一日を通じて本来の太陽光発電出力の約39%

が余剰電力となっていた計算になる。この事例では太陽光発電の単純な導入が既に限界に近付いていると言えるが、それでも二酸化炭素排出量削減のために今後も継続的な太陽光発電導入が進み、その余剰電力はさらに増加すると考えられる。そのため、太陽光発電余剰電力を有効かつ効率よく利用する技術が求められている。

太陽光発電などの新エネルギーの大量導入を支える技術として、仮想発電所(VPP: Virtual Power Plant)[12]が知られている。事業的観点からこれをエネルギー・リソース・アグリゲーションと呼ぶこともある[13]。従来は水力・火力・原子力・揚水などの大規模な発電所で電気を作り、電力ネットワークを通じて電力需要家に送り届ける、という一方的な電気の流れであった。しかし近年では住宅用太陽光発電とFITによって需要家側で発電した電気が電力ネットワークに逆潮流するようになり、電気の流れが双方向的になると同時に発電機が小型化・分散化してきた。VPPは、多数の需要家側に設置された太陽光発電・蓄電池・電気自動車などの分散型エネルギー資源(DER: Distributed Energy Resource)を、通信技術によって有機的知的に結合し協調制御することによって、まるで一つの大きな発電機のように取り扱う事ができる技術である。また、分散型エネルギー資源だけでなく照明・空調・ヒートポンプ給湯器などの負荷も同様に通信技術で直接的・間接的に協調制御することにより、電力ネットワークの同時同量の維持に貢献することができる。このように分散した発電機と負荷を強調させることをアグリゲーションと呼び、またアグリゲーションを実施する事業者はアグリゲーターと呼ばれる。

電力ネットワーク周波数の、電力需給が一致した時からの乖離を ΔF_{grid} とすると、周波数乖離は

$$\Delta F_{grid} = \frac{1}{K_{grid}} (\Delta E_{gen} - \Delta E_{load}) \quad (1)$$

となる[14]。ここで ΔE_{gen} と ΔE_{load} は、それぞれ需給一致点からの発電および需要の乖離である。また、 K_{grid} は電力ネットワークの特性を表す定数である。アグリゲーションにおける主要なアクションは図 1-11 の4つに分類される。図 1-11 の横軸は周波数乖離 ΔF_{grid} であり、縦軸は各アクションが発電あるいは需要の余剰側からアプローチしているのか、不足側からアプローチしているのかを区分している。ネガワットは、電力需要が余剰し ΔE_{load} が大きくなっている状況において、負荷の電力使用量を抑える、あるいは電力使用量の一部を蓄電池や電気自動車の放電によって賄い、 ΔE_{load} を0に近づけるアクションである。発電抑制は、発電量が余剰し ΔE_{gen} が大きくなっている状況において、発電量をカットする、あるいは蓄電池や電気自動車の充電によって発電の電力ネットワークへの逆潮流を減らすことによって、 ΔE_{gen} を0に近づけるアクションである。需要創出は、大きな ΔE_{gen} により ΔE_{load} が不足している状況において、空調やヒートポンプ給湯器などの負荷を動作させる、あるいは蓄電池や電気自動車を充電することによって、 ΔE_{load} を ΔE_{gen} に近づけるアクションである。ポジワットは、大きな ΔE_{load} により ΔE_{gen} が不足している状況において、蓄電池や電気自動車から電力ネットワークに向けて放電することによって、 ΔE_{gen} を ΔE_{load} に近づ

けるアクションである。これら4種類のアクションによって式(1)の右辺が0に近づき、電力ネットワークが需要供給一致に近づいて周波数乖離 Δf_{grid} が小さくなる。図1-11に示したように、各アクション全てに関わることができるデバイスは蓄電池や電気自動車などの蓄電システムであり、この事実は蓄電システムがアグリゲーションにおいて重要であることを示している。VPPのうち定置型蓄電池をアグリゲートした部分はバッテリーアグリゲーションと呼ばれる[15]。この定置型蓄電池には、定置専用の蓄電池だけでなく、電気自動車と電力ネットワークを連系するVehicle to Grid(V2G)技術等を利用することにより、多様な蓄電システムを適用することができる。VPPのDERであることから、バッテリーアグリゲーションの定置型蓄電池には分散化・小型化が求められ、これらの要求に適した化学蓄電池が注目されている。主要な化学蓄電池の例を表1.1に示す。表1.1において充放電効率とは蓄電システムの充電電力量[Wh]に対する放電で取り出せる電力量[Wh]の割合を指し、単電池充放電効率は単電池単独、システム充放電効率はシステム全体の充放電効率をそれぞれ示す。また、寿命とは一定の性能低下を示すまでの期間や動作回数を意味し、カレンダー寿命は充放電をせず保管した場合の、サイクル寿命は充放電サイクルを継続的に繰り返した場合の寿命をそれぞれ示す。エネルギー密度は、蓄電システムの重量または体積あたりの蓄電エネルギー量を示す。レートとは満充電から1時間で完全放電する出力を1C(シー)と定義し、充放電の出入力の大きさを示す。充電レートは充電時の最大レートを、放電レートは放電時の最大レートをそれぞれ示す。化学蓄電池の中でリチウムイオン蓄電池は、その充放電効率の高さ・サイクル寿命の長さ・エネルギー密度の高さ・充放電レートの大きさを特長としており、バッテリーアグリゲーションに使用する蓄電池として注目されている。

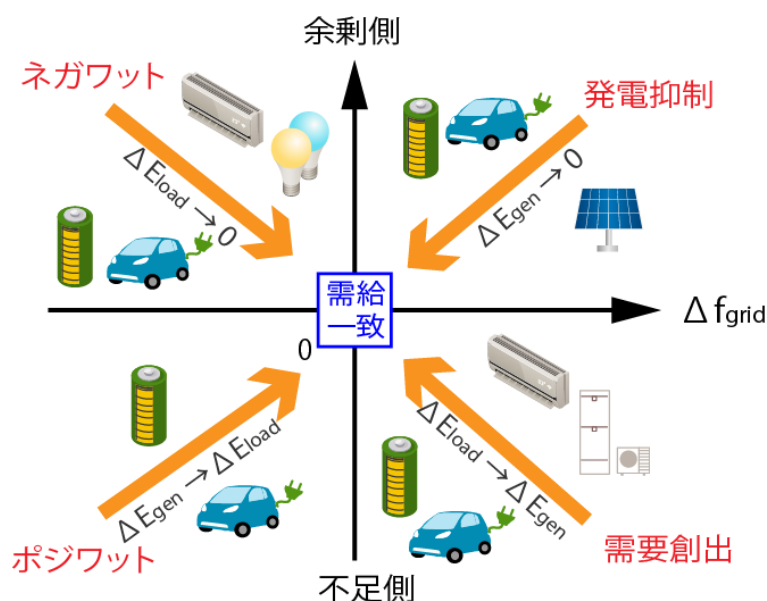


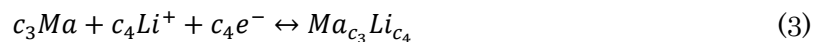
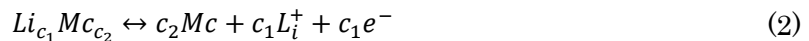
図 1-11 アグリゲーションの主要なアクション

表 1.1 主要な化学蓄電池とその特性[16]

	リチウムイオン蓄電池	ナトリウム硫黄電池	ニッケル水素蓄電池	レドックスフロー電池	鉛蓄電池
システム出力	0.006~40 MW	0.5~50 MW	0.01~0.3 MW	0.5~15 MW	0.003~5 MW
システム容量	0.05~40 MWh	3.6~300 MWh	0.03~0.5 MWh	1~600 MWh	0.01~10 MWh
単電池充放電効率	95 %	90 %	95 %	85 %	85 %
システム充放電効率	86 %	75 %	85 %	70 %	75 %
カレンダー寿命	10 年	15 年	10 年	20 年	17 年
サイクル寿命	10000~15000 サイクル	4500 サイクル	3500 サイクル	100000 サイクル	4500 サイクル
重量エネルギー密度	92 Wh/kg	87 Wh/kg	23 Wh/kg	10 Wh/kg	25 Wh/kg
体積エネルギー密度	176 Wh/L	83 Wh/L	51 Wh/L	15 Wh/L	62 Wh/L
充電レート	8 C	0.13 C	3.3 C	0.25~2 C	0.3C
放電レート	8 C	0.17 C	3.3 C	0.25~2 C	0.6 C

1.2 リチウムイオン蓄電池の劣化

リチウムイオン蓄電池は、コバルトなどの層状化合物を正極とし[17]、炭素系材料を負極とし[18]、正負極へのリチウムイオンの挿入(intercalation)を伴う機構[19]によって動作する化学蓄電池であり、近年では正極活物質にリン酸鉄化合物[20]やスピネルマンガン[21]、負極活物質にチタン酸化合物[22]やシリコン微粒子[23]を使用することもある。リチウムイオン蓄電池の動作原理を図 1-12 に示す。図 1-12 の茶色長方形は負極を、灰色長方形は正極を、青色長方形は電解液を示している。リチウムイオン蓄電池はその原理上 3 V 以上の起電力を発生するものが多く、炭酸エステルなどの有機電解液を用いて電気分解を防いでいる。リチウムイオン蓄電池は、充放電いずれの時も外部回路の電子の流れに連動して蓄電池内部のリチウムイオンが電解液の中を移動する。これを化学式で表現すると、



となる。ここでは右向きが充電、左向きが放電である。また c_1, c_2, c_3, c_4 は任意の定数であり、 Mc は正極活物質、 Ma は負極活物質を表す。式(2)(3)では充放電反応に寄与するリチウムと電子の物質量が一致する事を示している。

表 1.1 に示した通り、リチウムイオン蓄電池には寿命(EOL: End of Life)がある。新品(BOL: Beginning of Life)から EOL までの間、リチウムイオン蓄電池は徐々にその性能を低下させていく。この現象は劣化と呼ばれる。劣化が進行して EOL に近づく過程において、一般にリチウムイオン蓄電池の満充電容量(FCC: Full Charge Capacity)が減少し[24]、

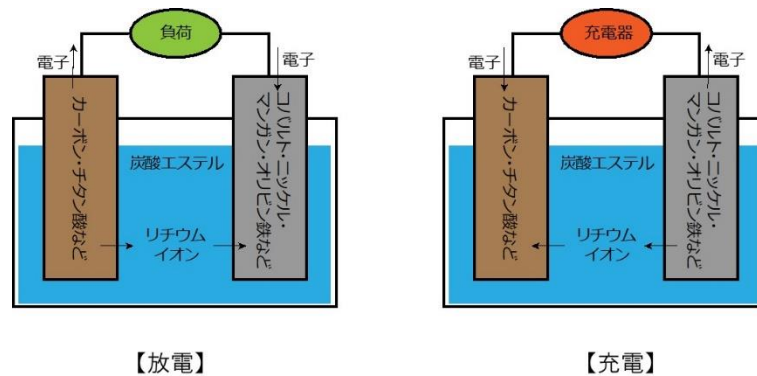


図 1-12 リチウムイオン蓄電池の動作原理

内部抵抗(R : Resistance)が増加し[25], 開回路電圧(OCV: Open Circuit Voltage)が変化する[26]. FCC の単位は電流量 Ah である. FCC の減少は正負極活物質の容量低下によって生じる[27]. これは正極活物質表面の不活性化[28][29]や, 充放電時の活物質の体積変化によって活物質粒子に割れや空隙が生じること[30]による, 活物質に挿入できるリチウムイオンの総量が減少する事などが原因として考えられる. R の増加は活物質表面の皮膜(SEI: Solid Electrolyte Interface)[31]の形成や, 充放電時の活物質の体積変化による活物質の割れ, あるいは電極構造[32]の脆化・崩れによって生じる. SEI は抵抗成分であり, また脆化・崩れによって活物質や電極構造にいわゆる「鬆が入った」状態になると, 電荷移動やイオン拡散の抵抗増加[33], あるいは電子の流路の断面積低下による抵抗増加につながる. OCV の変化は正負極の容量運用域のずれ[34]によって生じる. 構成されたりチウムイオン蓄電池の運用域における正極電位と負極電位の差によって充電率(SOC: State of Charge)と OCV の関係が決定されるが, 劣化によって正極に対する負極の運用域が徐々にずれ[35], これによって SOC と OCV の関係が変化する.

リチウムイオン蓄電池の劣化の要因は大別して 2 種類あり, 充放電サイクルによるサイクル劣化[36]と, 充放電回路から取り外して長期保管することによるカレンダー劣化が挙げられる[37]. カレンダー劣化では, FCC と R の変化速度は温度と SOC に依存する. すなわち, より温度が高い場合あるいは保管時の SOC が高い場合に, FCC はより速く減少し, R はより速く増加する. またサイクル劣化では, FCC と R の変化速度は充放電サイクルの SOC 幅と, 充放電サイクル中の平均 SOC に依存する. すなわち, 充放電サイクルの SOC 幅が大きい場合あるいは充放電サイクル中の平均 SOC が 50 %から離れている場合に, FCC はより速く減少し, R はより速く増加する. ただし, これらの劣化傾向は NiMnCo 三元系正極と炭素負極とで構成されたりチウムイオン蓄電池で確認されたものであり[37], 異なる正負極活物質を用いたリチウムイオン蓄電池では別の傾向を示す可能性がある. 特に, 炭素負極と電解液の反応により生じる負極表面皮膜[38], あるいは SOC による炭素負極のステージ構造変化[39]がこれらの劣化傾向に関係している可能性が指摘されており,

他の負極材料を用いたリチウムイオン蓄電池では異なる劣化傾向を示すことがあり得る。

1.3 バッテリーアグリゲーションの運用経済性

リチウムイオン蓄電池の劣化による性能低下としては、これまで満充電容量および出力特性[40]が注目され、その影響について議論されてきた。一方、リチウムイオン蓄電池の劣化は充放電エネルギー効率の低下につながる事が報告されている[41]。充放電サイクル1回あたりの充電エネルギーを E_c 、放電エネルギーを E_d 、充放電エネルギー効率を η_{cd} とすると、

$$\eta_{cd} = -\frac{E_d}{E_c} \quad (4)$$

であり、充放電エネルギー損失 L_{cd} との間には

$$L_{cd} = E_c(1 - \eta_{cd}) = E_c + E_d \quad (5)$$

の関係がある。 L_{cd} は主にリチウムイオン蓄電池の電気抵抗および分極抵抗に起因する発熱[42]によって生じる。

前述したようにリチウムイオン蓄電池はバッテリーアグリゲーションの DER として、新エネルギーの大量導入に伴う式(1)の ΔF_{grid} 低減、および新エネルギーの有効利用に役立つ事が期待される。その際、例えば図 1-9 および図 1-10 に示した太陽光発電余剰電力の対策では、大きな太陽光発電電力導入のため、発電電力が余剰する時間帯に一旦充電し、太陽光発電電力のない夕方から夜間にかけて貯まっているエネルギーを放電する事[43]が想定される。この時、リチウムイオン蓄電池内部の電気抵抗、および充放電時の分極を 0 にすることが現状の技術では不可能であるため、充放電の際に必ず 0 でない L_{cd} が生じる。ここでの L_{cd} は蓄電池の充放電過程で発熱として消失した、本来利用できたはずの太陽光発電電力量であり、あるいは本来購入する必要のなかった小売電力量である。従って小売電力の電力量料金単価を T_r とすると、 $T_r L_{cd}$ の経済損失を生じることになる。

現在の電気自動車技術では、内燃機関自動車との比較においてユーザーが満足する航続距離を確保するために、1台あたり 100 kWh 程度のリチウムイオン蓄電池が必要である。2019年の世界年間自動車販売台数は 9,179 万台であった[44]ので、この全てを電動化するために必要なリチウムイオン蓄電池の総容量は、年間で約 9.18 TWh と考える事ができる。リチウムイオン蓄電池の定格電圧を 3.70 V とすると、電気量換算でのリチウムイオン蓄電池の総蓄電電気量は約 2.48 TAh となる。図 1-12 で示したように、リチウムイオン蓄電池は原理的に電子の流れとリチウムイオンの動きが連動しており、別の見方をすると蓄電電気量とリチウム量は比例関係にあると言える。ここでファラデー定数 9.65×10^4 [C/mol]より

- ・リチウムのモル質量： 6.94 g/mol

$$\cdot 1 \text{ mol の電子が持つ電気量} : \frac{9.65 \times 10^4 [\text{C/mol}]}{3600 [\text{s}]} \approx 26.8 \text{ Ah/mol}$$

であるから、年間に必要な純リチウムの量は

$$\cdot 6.94 [\text{g/mol}] \times \frac{2.48 \times 10^{12} [\text{Ah}]}{26.8 [\text{Ah/mol}]} \approx 6.42 \times 10^5 [\text{t}]$$

になる。一方、世界の純リチウム生産量は図 1-13 に示すとおりであり、2018 年は $8.47 \times 10^4 \text{ t}$ であった。従って現状では純リチウムが、全ての自動車を電動化するために必要な量のおよそ 13.2% しか生産されていない。リチウム生産量は増加傾向にあるが、リチウムの用途はリチウムイオン蓄電池に限定されているわけではないため、今後の電気自動車普及において資源的制約条件となり得ることが明らかである。このことは、リチウムイオン蓄電池のリユース・リサイクルが不可欠である事を示している。特に電気自動車に導入される車載リチウムイオン蓄電池は当初高い性能を持つことから、車載電池としての EOL 後における定置型への用途変更を伴ったリユース[45]が検討されている。このリユースされたリチウムイオン蓄電池は様々な様態で劣化が進んでおり、EOL 後に回収し劣化状態に応じて仕分けることが想定されている(図 1-14)。しかし性能面でのリユース電池の平準化には限界があり、結果として様々な種類・劣化状態のリチウムイオン蓄電池が市場に供給されることが予想される。

種類・劣化状態の異なるリチウムイオン蓄電池では、 η_{cd} もそれぞれ多様な値を示す。様々な η_{cd} の定置型リチウムイオン蓄電池が DER としてアグリゲートされた場合、バッテリーアグリゲーション全体の運用経済性に影響を及ぼすことが考えられる。たとえば図 1-15 の様な、太陽光発電余剰電力を充電して有効活用するためのバッテリーアグリゲーションを考える。太陽光発電設備とリチウムイオン蓄電池設備はクラウド側から制御され、太陽光発電余剰電力が発生した際にはリチウムイオン蓄電池が充電動作をすることによってそ

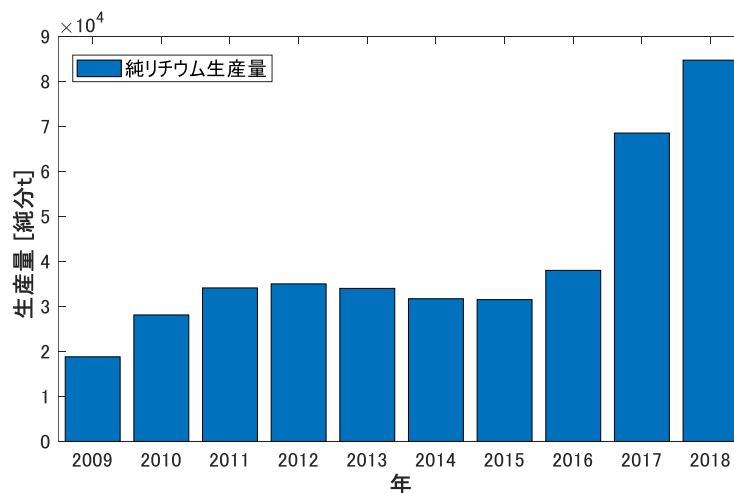


図 1-13 世界の純リチウム生産量推移[46]

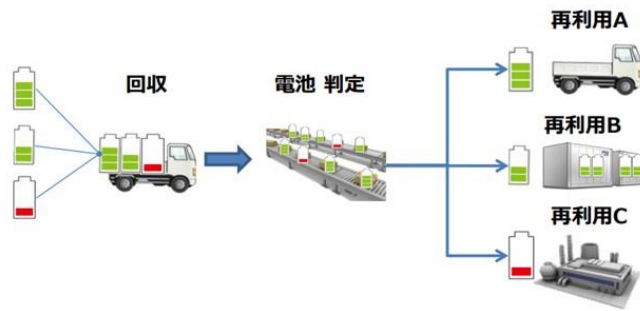


図 1-14 リチウムイオン蓄電池のリユース・リサイクルのフローの一例[47]

の余剰電力を電力ネットワークから吸収する．これは式(1)の ΔF_{grid} を 0 に近づけるための制御である．ここで，各リチウムイオン蓄電池はその種類および劣化状態によって，それぞれ異なる充放電エネルギー効率を示すものとする．すると，余剰電力の吸収の仕方によってバッテリーアグリゲーション全体の合計充放電エネルギー損失が変わり，後に放電して利用できる太陽光発電余剰電力量が変わって，運用経済性が変化する．具体的には，より高効率な蓄電池に優先的に太陽光発電余剰電力を充電することによって，充放電エネルギー損失を低減できる．ただし，バッテリーアグリゲーションに含まれる各リチウムイオン蓄電池の η_{cd} をアグリゲーション運用しながら把握することは一般に困難である．仮にアグリゲーションされているリチウムイオン蓄電池が全て同一メーカー・同一仕様のものであれば，あらかじめ実施しておいた充放電試験等の統一的データを利用して η_{cd} を予測する事が可能であろう．しかし前述したように今後はリユース電池のバッテリーアグリゲーションが想定されており，従って多様なリチウムイオン蓄電池の η_{cd} を一元的に把握できる統一的な技術が望まれる．これはリチウムイオン蓄電池の劣化状態を把握する技術であり，劣化診断と呼ばれる．

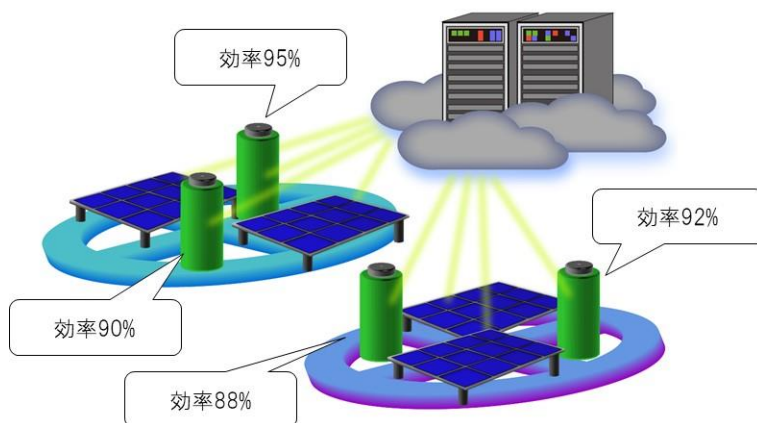


図 1-15 太陽光発電余剰電力活用のためのバッテリーアグリゲーションのイメージ[48]

1.4 リチウムイオン蓄電池の劣化診断技術

リチウムイオン蓄電池の劣化診断手法を系統分類すると、周波数領域(交流)における手法と、時間領域(直流)における手法に大別できる(図 1-16)。最も単純な劣化診断手法は、リチウムイオン蓄電池をラボに持ち込んで充放電試験装置に取り付け、満充電から完全放電までの間を数回充放電し時系列データを取得することによる直接充放電測定法である。しかし劣化診断技術が鋭意検討されてきた背景には、何らかの機器、装置、あるいはフィールドで運用されている最中のリチウムイオン蓄電池の劣化状態を簡便に把握したいという要望があった。すなわち機器、装置、あるいはフィールドからリチウムイオン蓄電池を取り外し、ラボに持ち込むプロセスは利便性の面で好ましくなく、直接充放電測定法に代わる劣化診断手法が求められていた。また、リチウムイオン蓄電池の劣化状態を把握する手段として解体分析が挙げられる[49][50]が、運用中のリチウムイオン蓄電池を診断後も引き続き利用していくため、非破壊な手法が求められていた。

リチウムイオン蓄電池が発明された頃[18]すでに蓄電池の領域で発展していた劣化診断技術の一つは、交流インピーダンス法である。交流インピーダンス法は外部から正弦波電流を周波数掃引しながら印加してその応答をインピーダンスとして取得し、Nyquist プロット(あるいは cole-cole プロット)に展開する手法である[51][52][53]。Nyquist プロットのイメージを図 1-17 に示す。そして Nyquist プロットを表現できるようにリチウムイオン蓄電池の内部インピーダンスを模擬した等価回路[54][55]を設定して各回路定数をフィッティングする。このとき、リチウムイオン蓄電池の内部インピーダンス成分としてオーム抵抗、電荷移動抵抗[56]、拡散抵抗(Warburg インピーダンス)[57]を想定する。また等価回路では回路素子として抵抗、キャパシタ、インダクタが主に用いられるが、リチウムイ

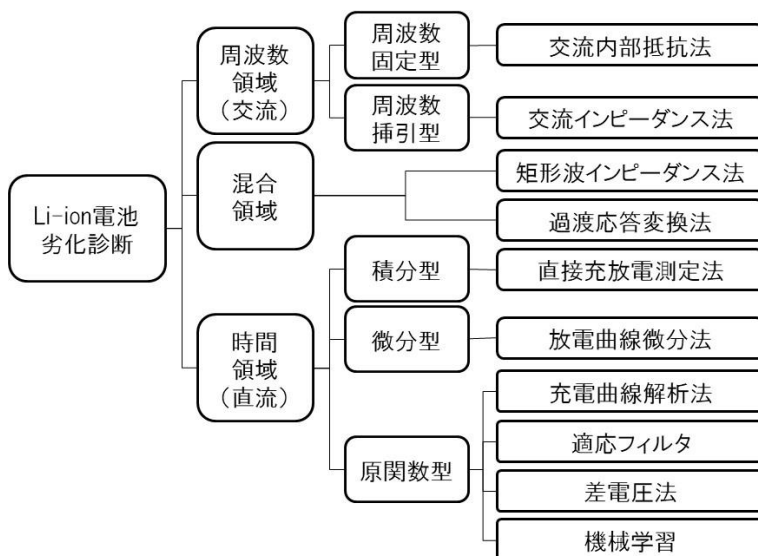


図 1-16 リチウムイオン蓄電池の劣化診断手法の系統分類の例

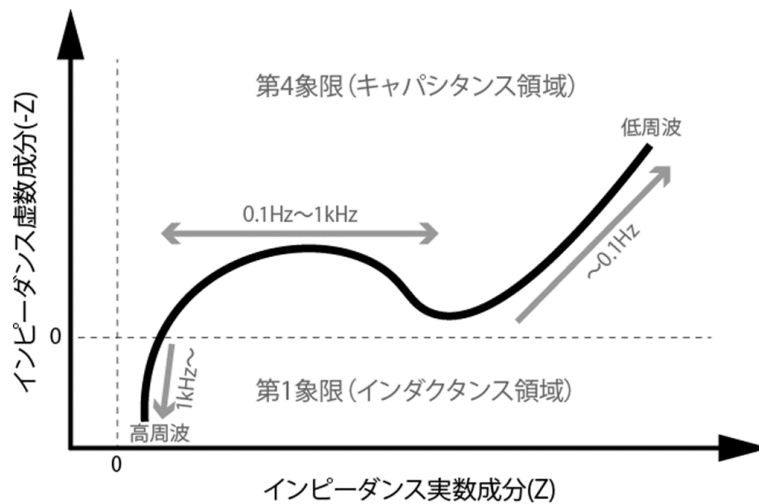


図 1-17 リチウムイオン蓄電池の Nyquist プロットのイメージ

オン蓄電池の実際の Nyquist プロットの形状をより正確に表現するための疑似的回路素子として CPE[58]や Z_w [57]が用いられる。交流インピーダンス法はリチウムイオン蓄電池の内部インピーダンスを計測する手法であるが、リチウムイオン蓄電池の劣化において電池容量低下とインピーダンス増加が並行して生じる性質を利用した劣化診断手法として用いることもできる[59]。また、交流インピーダンス法で得られる Nyquist プロットにはリチウムイオン蓄電池の正負極活物質の状態に関する情報が含まれており、さらにこれらの情報を分離できるため、リチウムイオン蓄電池を解体せずに内部材料の情報を得ることができる[60]。

交流インピーダンス法で印加する正弦波のうち、1 kHz の周波数のみに固定して内部インピーダンスを測定する手法が交流内部抵抗法である。これは国際電気標準会議(IEC: International Electrotechnical Commission)あるいは日本産業規格(JIS: Japanese Industrial Standards)の試験規格として定められている手法である[61][62][63][64]。1 kHz の交流波を印加して得られるインピーダンスは、Nyquist プロットにおいてリアクタンス成分が正から負に転じる領域付近に該当する[65]。この 1 kHz インピーダンスがリチウムイオン蓄電池の容量維持率と線形関係にある事例が報告されており[66]、この性質を利用した劣化診断が可能である。

機器、装置、あるいはフィールドにおいてリチウムイオン蓄電池は直流で運用されるため、周波数領域で実施する劣化診断は専用装置を搭載する必要がある、また運用とは明確に異なる電流を流す必要があるなどの不便があった。そのため、手法をより直流に近づける混合領域としての工夫が種々実施された。事例の一つは、交流インピーダンス法で印加する正弦波電流を矩形波に変更した矩形波インピーダンス法である[67]。これはいくつかの周波数での矩形波電流印加とフーリエ変換による高調波解析を併用し、疑似的に交流イ

インピーダンス法と同様の結果を $10^1 \sim 10^4$ kHz 程度の周波数領域において得ることができ
る。またこの手法を kWh 級蓄電システムに適用した事例も報告されており[68]、フィールド
での実運用が可能な技術となっている。

混合領域におけるもう一つの事例は、リチウムイオン蓄電池に印加した直流電流を変化
させた瞬間から発現する、電池電圧の指数関数的な経時変化を利用した過渡応答変換法で
ある。この指数関数的な経時変化のことをリチウムイオン蓄電池の緩和(relaxation)と呼ぶ
[69]。過渡応答変換法では交流インピーダンス法と同様に等価回路を設定し、緩和を表現
できる回路定数をフィッティングする。この等価回路では前述した CPE や Z_w は使われ
ず、抵抗とキャパシタで構成された Randles 型多段並列等価回路[70]が一般的に用いられ
ている。この等価回路の抵抗 - キャパシタ並列回路の段数は、少ない場合は 2 段[71][72]、
多い場合では 7 段[73] の事例が報告されている。Randles 型 RC2 段並列等価回路の例を
図 1-18 に示す。ここで E_{mf} はリチウムイオン蓄電池の起電力である。あるいはより複雑な
分布定数回路が用いられることもある[74]。抵抗 - キャパシタ並列回路の特性は Nyquist
プロット上で半円弧を描き[51][52][53]、この半円の頂点は周波数 f_{RC} の交流波に対するイ
ンピーダンスを表す。ここで Randles 等価回路に含まれるある並列回路の抵抗を R_{eq} 、キ
ャパシタンスを C_{eq} とすると、

$$f_{RC} = \frac{1}{2\pi R_{eq} C_{eq}} = \frac{1}{2\pi \tau_{RC}} \quad (6)$$

の式が成り立つ。式(6)の τ_{RC} は時定数と呼び[75]、緩和時間すなわち直流電流変化の起点か
らの経過時間を表す。つまり、例えば $f_{RC} = 0.1$ Hz のとき $\tau_{RC} \cong 1.6$ s であるから、周波数
0.1 Hz のインピーダンスに対応する緩和時間は約 1.6 s と考える事ができる。ここでのイ
ンピーダンスは定義上、緩和開始時からの電池電圧変化を緩和開始前後の電流差で除した
値であり、あるいは Nyquist プロット上での原点からの距離である。過渡応答変換法では、
式(6)の周波数 f_{RC} と時定数 τ_{RC} の関係およびインピーダンスの定義に基づいて、直流過渡応
答から Nyquist プロットを作成する。ただし、過渡応答変換法は機器、装置、あるいはフ
ィールドで運用中のリチウムイオン蓄電池の劣化診断を目的としているため、実用上のデ
ータサンプリングレートが 0.1 s 以上になる。従って式(6)より約 1.6 Hz 以下の周波数のみ
適用可能であり、概して拡散抵抗[57]領域の Nyquist プロットのみ得られる。

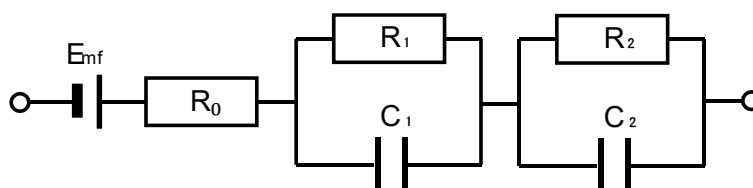


図 1-18 Randles 型 RC2 段並列等価回路の例

時間領域(直流)で実施するリチウムイオン蓄電池の劣化診断手法としては、まず 1 つ目に放電曲線微分法が挙げられる。放電曲線微分法では 1/25 C 程度の微小電流で満充電から完全放電までリチウムイオン蓄電池を放電し、その時の電池電圧と放電電流量のデータを微分により解析する手法である[34]。方法としては電池電圧を放電電流量で微分する dV/dQ 法と、逆に放電電流量を電池電圧で微分する dQ/dV 法がある。微分曲線のピークは、 dV/dQ 法では電極の相転移によって、 dQ/dV 法では電極の相平衡によってそれぞれ発現する[76]。また dV/dQ 法は解析が比較的容易であるが、 dQ/dV 法は放電曲線の電圧変化が少ない平坦領域で微分値が不定になりやすいことが解析を難しくする。放電電流が 1/25 C 程度の微小電流であるために得られる時系列データ点数は多く、いずれの方法でも解析データの平均化あるいは間引き処理が必要になる。微分曲線のいくつかのピーク間距離からは正負極の劣化状態や SEI 成長を観察する事ができる。さらに、SEI が生成する副反応によってリチウムが不可逆的に固定[38]されることによる正負極の運用バランスの変化量を推定し[77][78]、電池容量の低下を予測する事ができる。

時間領域の劣化診断法の 2 つ目として、充電曲線解析法が挙げられる。放電曲線微分法では、運用中のリチウムイオン蓄電池の放電電流が実負荷によって決まる実態と、診断時に実施する低レート定電流放電とが条件として乖離することが課題となる。これに対して充電曲線解析法は電気自動車の充電器での充電電流を利用することで、実運用中の診断を可能とする狙いがある。具体的な事例としては、定電流定電圧充電ログデータから定電流充電時間と充電開始時の SOC の情報を抽出して電池容量を推定する手法[79]、充電中の電池の電圧挙動を回帰計算によって解析し、正負極活物質の容量、抵抗、運用バランスに係るパラメータを決定する手法[80]が挙げられる。

時間領域の劣化診断法の 3 つ目として、適応フィルタが挙げられる。適応フィルタを用いたリチウムイオン蓄電池の劣化診断では、充放電時系列データから最適化アルゴリズムによって電池状態を表すパラメータを逐次的に補正する伝達関数を適応的に算出する。リチウムイオン蓄電池の状態パラメータは一般に SOC および等価回路の回路定数に基づいて設定される。主要な手法としてはカルマンフィルタが挙げられる。これは SOC および等価回路の回路定数に係る同時推定を実施する事が多く、具体的には EKF(Extended Kalman Filter)を用いた事例[81][82][83]や、UKF(Unscented Kalman Filter)を用いた事例[84][85]がある。カルマンフィルタは特に電流センサー測定値のかたよりを克服することによって SOC を高精度に推定する事ができる。従って 2 点の充放電時系列データ間における累積充放電電気量 ΔQ_{ts} と充電率の差 $\Delta S_{oc,ts}$ から

$$C_{fc} = \frac{\Delta Q_{ts}}{\Delta S_{oc,ts}} \quad (7)$$

によってその時の FCC の値 C_{fc} を求める事ができる[86]。一方、等価回路の回路定数推定がブラックボックス化する課題があったが、その後この推定値が一定の電気化学的妥当性を得られるよう修正された事例が報告されている[87][88][89]。また、従来のカルマンフィ

ルタでは SOC と OCV の関係を一定としてパラメータ推定が実施されてきた。SOC と OCV の関係は劣化に伴う正負極の運用バランス変化[77][78][80]によって徐々に変わる性質があるが、最近ではこれを推定対象のパラメータに含めた事例がある[90]。そのほか、カルマンフィルタと逐次最小二乗法を併用した事例も報告されている[91][92]。

時間領域の劣化診断法の 4 つ目として、差電圧法が挙げられる。この手法では主に同じサイクルの放電時系列データから 2 点を抽出し、両点で示された放電電圧の差を指標として電池容量を推定する手法である。2 点の時系列データは全充放電サイクルにおいて一定の条件下で抽出される。例えば満充電状態からの放電開始時と、そこから一定時間の定電流放電後の時点、の 2 点を抽出した事例がある[93]。

時間領域の劣化診断法の 5 つ目として、機械学習が挙げられる。機械学習の主要な方法はニューラルネットワーク(NN: Neural Network)である。NN は神経細胞のニューロンとシナプスを模擬したモデルである。ニューロンにあたるノードには入力値を変換する活性化関数が設定され、またシナプスにあたるノード間結合には通過する値に乘じる重みが設定されており、誤差逆伝播法によって各重みが学習的に補正される[94]。リチウムイオン蓄電池の劣化診断では、SOC、電流、等価回路の回路定数などが NN の入力値とされる。リチウムイオン蓄電池の場合は充放電データのような時系列データが扱われているため、再帰型 NN[95]が好んで用いられる。また再帰型 NN 特有の勾配消失あるいは勾配爆発[94]の問題を解決するため、LSTM(Long short-term memory)が用いられることがある[96]。

バッテリーアグリゲーションの DER として運用されているリチウムイオン蓄電池に対し劣化診断を実施する場合は、その地理的分散を考慮して IoT を用いたオンラインでの手法が望ましい。図 1-16 に示した手法の中では時間領域側に近いほど IoT との親和性が高く、特にリチウムイオン蓄電池に標準搭載されている BMS(Battery Management System)の計測データを利用できる劣化診断手法は特に有望と考えられる。代表的な BMS 計測データとしてはリチウムイオン蓄電池の電圧、温度、充放電電流が挙げられる。現状ではリチウムイオン蓄電池の製造者ごとに BMS の仕様は異なり、従って計測データの不確かさや時間分解能が異なると考えられるが、仮に BMS 仕様が規格化された場合には劣化診断技術を用いた新規事業領域が創出される可能性が提示されている[97]。

以上に示したように、リチウムイオン蓄電池の劣化診断手法は多岐にわたり検討されてきた。一方 Hou らは、「過去の蓄電池劣化に係る研究は主に容量劣化に注目して実施されてきており、一方で特に充放電サイクルに伴う効率劣化の研究事例が少ない」と指摘し[98]、充放電エネルギー効率と寿命劣化との関係を検討した希少な事例として Redondo-Iglesias らの報告[41]を挙げた。1.3 節で述べたように、バッテリーアグリゲーションの運用経済性を向上あるいは最適化するために DER であるリチウムイオン蓄電池の充放電エネルギー効率を把握する必要がある。しかし現状では劣化によって低下した充放電エネルギー効率を推定する劣化診断手法、すなわち効率劣化診断は報告されていない。

1.5 本研究の目的

以上で述べたように、バッテリーアグリゲーションの DER として用いられる、新品あるいはリユースされたリチウムイオン蓄電池に対して、充放電エネルギー効率を推定するための劣化診断手法の開発が望まれている。そこで本研究はリチウムイオン蓄電池の充放電エネルギー効率の推定法を効率劣化診断として新規に提案することを目的とした。分散化されたリチウムイオン蓄電池を対象とすることを考慮し、IoT による知的・有機的な制御を想定できる蓄電池劣化モデル生成法を採用し提案した。具体的には、図 1-16 における差電圧法と機械学習に基づく手法を採用するとともに、実用上想定される必要に応じて新規着想による手法を検討した。

1.6 各章の概要

本論文の構成と概要は次のとおりである。

第 1 章では本研究の背景となる、気候変動を考慮した二酸化炭素削減の動向、バッテリーアグリゲーションの必要性と運用経済性、リチウムイオン蓄電池の劣化とその診断方法、今後のリチウムイオン蓄電池リユースの必要性とバッテリーアグリゲーションの経済的運用に求められる充放電エネルギー効率劣化診断手法について説明した。

第 2 章では既報の劣化診断手法のうち差電圧法に注目し、差電圧指標から蓄電池劣化モデルを生成し効率劣化診断が可能であることを示した。また、この効率劣化診断に基づいたリチウムイオン蓄電池の経済性指標を提案した。さらにバッテリーアグリゲーションに含まれるリチウムイオン蓄電池群を想定し、経済性指標を基準として選択的に太陽光発電余剰電力を受け入れることによる、運用経済性改善効果を解明した。これは、バッテリーアグリゲーションにおけるリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断の有効性の実証である。

第 3 章では蓄電池劣化モデル生成法に充放電電流を導入し、充放電出入力に対して一般化する検討を行った。具体的には、充放電エネルギーを FCC, OCV, R の 3 パラメータと充放電電流で定式化し、FCC, OCV, R それぞれについて差電圧指標から蓄電池劣化モデルを生成できる事を示した。これにより、差電圧指標からの実用的な効率劣化診断が可能となる。次に、この蓄電池劣化モデルを用いてバッテリーアグリゲーションモデルの運用経済性改善シミュレーションを実施した。具体的には、バッテリーアグリゲーションの DER として 200 台の電気自動車および V2G 充電器を想定し、2018 年に九州エリアで実施された太陽光発電出力制御を余剰電力とみなして電気自動車の蓄電池に充電するものとした。これら電気自動車に搭載された蓄電池を蓄電池劣化モデルで模擬し、既知の FCC 減少モデルによる劣化進展を適用した。そして効率劣化診断結果に基づいた電気自動車 200 台の選択的充電の効果を、ランダム充電と比較する事によってバッテリーアグリゲーションの充放電エネルギー効率と収益の改善率として定量評価した。

第 4 章では、第 3 章の蓄電池劣化モデルの課題を教師データの観点から分析し、より現実的な蓄電池劣化モデル生成法を検討した。検討の一つは NN による教師データ量低減で

ある。ここでは FCC, OCV, R それぞれに対して NN による蓄電池劣化モデル生成法を適用し, その効果を検証した。もう一つの検討は, バッテリーアグリゲーションに対してリユースバッテリーなど未知のリチウムイオン蓄電池が導入されることを想定した, 教師なしの蓄電池劣化モデル生成法である。ここでは特に OCV の蓄電池劣化モデル生成を検討し, 画像処理法である GFFD(Gaussian Free-Form Deformation)[99]をリチウムイオン蓄電池向けにアレンジした新規手法を新たに提案した。

第 5 章では本論文を総括するとともに, 第 3 章および第 4 章で提案した各蓄電池劣化モデル生成法の特徴をまとめ, バッテリーアグリゲーションの効率劣化診断においてそれぞれが担う役割を提案するとともに, 効率劣化診断の気候変動問題への貢献の可能性を提示した。

第 2 章 効率劣化診断による運用経済性改善

2.1 はじめに

制御弁式鉛蓄電池の領域において、*coup de fouet* と呼ばれる電池電圧挙動が知られている[100]。 *coup de fouet* は制御弁式鉛蓄電池を満充電状態から放電した直後に、急激な電池電圧の降下と復帰を示す挙動である。この電圧降下時の最低電圧を *trough voltage* と呼び、また電圧復帰時の最高電圧を *plateau voltage* と呼ぶ。 *trough voltage* および *plateau voltage* はそれぞれ制御弁式鉛蓄電池の特性および劣化と関係があることが Pascoe らによって報告されている[100]。ここでは *trough voltage* および *plateau voltage* をまとめて *coup de fouet* パラメータと呼ぶ。以下に *coup de fouet* に見られる重要な性質を述べる。まず、劣化前の状態において満充電状態を起点とし、定電流、定電力で放電した場合には、放電出力レートおよび定格 FCC が *coup de fouet* パラメータと一次関数的な相関関係になる。また、過酷な条件で充放電あるいは継続的浮動充電をした場合、劣化によって減少した FCC と *coup de fouet* パラメータとが一次関数的な相関関係になる。さらに、満充電状態を定義する浮動充電電圧を上昇させると、 *coup de fouet* パラメータは共に上昇する。

coup de fouet パラメータは、図 1-17 に示した Nyquist プロットのインピーダンス虚数成分が正であるインダクタンス領域に対する過渡応答であるように見える。つまりインピーダンス虚数成分が 0 の箇所は、インピーダンスの絶対値すなわち Nyquist プロットの原点からの距離が最も小さくなる箇所であり、この時の応答で *plateau voltage*、それよりも高周波数領域のインピーダンス絶対値が大きい領域で *trough voltage* が発現していると思われた。しかし制御弁式鉛蓄電池の Nyquist プロットおよびボード線図[101]を見ると、インピーダンス虚数成分が 0 になる周波数は約 100 Hz であり、式(6)で時定数に変換すると約 1.6 ms である。これは Pascoe らが報告した *coup de fouet* の過渡応答時定数、すなわち数秒～数十秒で *trough voltage* が出現する現象と矛盾している。*trough voltage* は内部インピーダンスの過渡応答ではなく、鉛蓄電池特有の放電開始直後の電極表面化学反応に起因すると考えられる[102]。

一方、Pascoe らによる *coup de fouet* の研究[100]は、満充電状態からの放電初期電池電圧挙動が劣化による FCC 減少と相関関係にあることを示していた。*coup de fouet* に鉛蓄電池特有の *Trough voltage* が存在しないとすれば、リチウムイオン蓄電池でも発現し得る通常の放電過渡応答に見える。つまり、*plateau voltage* は *trough voltage* から通常の過渡応答に復帰した時点の放電電圧であることが示唆される。もしそうであれば、リチウムイオン蓄電池を満充電状態から放電した時の、ある時点の放電電圧は FCC と相関することになる。あるいは、浮動充電電圧上昇に伴って *coup de fouet* パラメータも上昇したことを踏まえると、満充電時電圧と放電電圧の差が FCC と相関している可能性も考えられる。

Liu らは、満充電状態から定電流放電を行い、放電開始時の電圧と、放電中のある時点の電圧の差電圧から FCC を推定できることを報告している[93]。これによると、満充電時電圧と放電開始後 500 秒、1500 秒、2300 秒の放電電圧との差電圧から、劣化による FCC 低下の指標である health indicator および残寿命である remaining useful life を精度よく推定する事ができる。このことは制御弁式鉛蓄電池における coup de fouet から得られた示唆と可能性が、リチウムイオン蓄電池においても成立する事を示している。一方 Liu らの検討には、バッテリーアグリゲーションの DER として運用されるリチウムイオン蓄電池を想定した場合に、3つの実用上の課題が含まれている。

1 つ目の課題は検討が定電流放電で実施された事である。実際にバッテリーアグリゲーションの DER として導入されるリチウムイオン蓄電池の放電は、パワーコンディショナ等の直流交流変換装置を介して負荷装置の電力消費に充てられるため、定電力放電あるいはそれに近い状態である事が容易に想定できる。coup de fouet では制御弁式鉛蓄電池において定電流放電、定電力放電ともに同様の結果が得られることが示されている[100]が、リチウムイオン蓄電池の定電力放電でも適用できるかは確認が必要である。

2 つ目の課題は検討が単電池で実施されたことである。実際にバッテリーアグリゲーションの DER として導入されるリチウムイオン蓄電池は複数の単電池を直列並列に接続したモジュール(組電池)である。安全性確保のため、リチウムイオン蓄電池の充放電は単電池の上下限電圧の範囲で制御される。単電池の場合は間違いなく電池電圧が上限電圧あるいは下限電圧まで到達して充電と放電が停止する。しかしモジュールの場合は、構成するいずれかの単電池が上限電圧あるいは下限電圧に到達したところで充電と放電を停止する。モジュールを構成する単電池は、運用開始時は全ての電池電圧がそろっているが、運用中に徐々に各単電池電圧がズレを生じていく。その理由はいくつかあるが、主要なものはモジュールを構成する各単電池の温度差である。充放電に伴って各単電池は電気抵抗および分極に起因する発熱[42]を生じるが、モジュールの形状的特性により各単電池の放熱性が異なるため、充電停止時および放電停止時の各単電池温度にばらつきが生じる。リチウムイオン蓄電池は温度が上昇すると電気抵抗が低下する傾向があるため、各単電池の過電圧に差が生じて結果的に電池電圧の差に帰着する。また、リチウムイオン蓄電池は温度によって劣化速度が変わるので、各単電池の劣化状態すなわち FCC に差が生じ、単電池間の SOC にばらつきが生じる。SOC は OCV と密接に係わりがあり、結果的に各単電池電圧の差に帰着する。以上で述べたように、モジュールでは構成する各単電池の電圧が異なり、また充放電終了は構成単電池の一つが上下限電圧に到達した時に実施する。従って、充電終了時に全ての単電池が満充電状態にならず、また放電終了時に全ての単電池が完全放電状態にならない。このような運用の実態を踏まえて、モジュールの放電開始時の電圧と放電中のある時点の電圧の差電圧が、単電池の場合と同様の結果を示すかを確認する必要がある。

3 つ目の課題は差電圧を抽出するまでの時間が放電開始後 500 秒、1500 秒、2300 秒と

長い事である。太陽光発電余剰電力対策として用いられるリチウムイオン蓄電池の運用を想定した場合、満充電状態からの放電を実施するタイミングを利用した診断は妥当である。快晴の日であれば昼間に大きな太陽光発電電力が生じ、これを充電することによってリチウムイオン蓄電池は満充電状態となり、夕方以降に放電が実施される[103]。この夕方以降の放電開始時が診断のタイミングである。年間の快晴の日数は都道府県によってばらつきがあるが、平均的には 20 日/年 程度あり[104]、これが条件の良い診断日の頻度となるであろう。ただしこの放電は電力を受け入れる負荷装置の稼働に依存するため、実用の上で毎回同一条件での長時間放電が実施できるかが不明である。確実に条件をそろえるためには、より短い放電時間での診断手法を要求される。

以上述べた 3 つの課題と、本研究の目的を集約すると以下の通りである。

- (1) 定電力放電で診断できること
- (2) モジュールに適用できること
- (3) 短時間の放電で診断できること
- (4) 充放電エネルギー効率が推定できること

満充電状態からの放電時における差電圧指標を用いて、これら 4 項目を満たす劣化診断手法を確立するため、リチウムイオン蓄電池のモジュールに対する定電力充放電サイクル試験を実施し、時系列データを取得した。充放電サイクル試験の詳細な条件は本論文末尾の共通条件(2)の項目に記載した。ここで用いる差電圧指標は、SOC 変化の少ない短時間放電条件であれば、リチウムイオン蓄電池の内部インピーダンスに起因する過渡応答に近似する。国内外の試験規格によると、リチウムイオン蓄電池の直流内部抵抗測定では 10~35 秒程度の連続的な放電が実施される[61][62][63][64]。これは放電開始当初の過渡応答の大部分を完了させる前処理と考える事ができる。これを踏まえて本章の検討では放電時間を 20 秒として固定的に設定した。なお、この放電時間を変化させた場合の比較検討については、本章の手法をより実用的に発展させた第 3 章の検討において実施している。さらに、実用上 BMS を用いた場合を想定して、差電圧指標算出時の満充電時電圧を放電開始時電圧ではなく充電上限電圧に設定した。これにより、内部インピーダンスによる過電圧を放電側だけでなく充電側も含めて差電圧指標とする事ができ、差電圧指標の数値が増加して劣化診断推定値分解能が向上すると考えた。

以上の条件で得られた差電圧指標に基づき、リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断によるバッテリーアグリゲーションの運用経済性改善検討を行った[105]。なお、本章~第 4 章までの検討において、本論文末尾の共通条件(1)に記載の通り、数式計算における充放電電流・充放電電力・充放電電流量・充放電エネルギーの値について、特に断りがない限り充電を正、放電を負と定義した。

2.2 差電圧指標を用いた充放電エネルギーの推定

まず，差電圧指標からの FCC 推定がリチウムイオン蓄電池モジュールにも適用可能であることを確認した．本章検討で使用した差電圧指標 V_{diff,D_t} [V]は図 2-1 に示すとおりである． V_{diff,D_t} の算出で使用する満充電時電圧 $V_{c,max}$ [V]は，単電池上限電圧 4.15 V から算出される 8 直列モジュールの上限電圧 33.2 V とした．また，満充電到達から放電開始までは十分な緩和時間[69]を設定した．本論文末尾の共通条件(2)に記載した通り，この緩和時間は 1.5 h のインターバルとして与えた．満充電状態からの放電時間は D_t [s]，この時にサンプリングされた放電電圧を V_{dsam,D_t} [V]とし，

$$V_{diff,D_t} = V_{c,max} - V_{dsam,D_t} \quad (8)$$

で V_{diff,D_t} を求めた．また前述した通り，本章検討では $D_t = 20$ [s]とした．

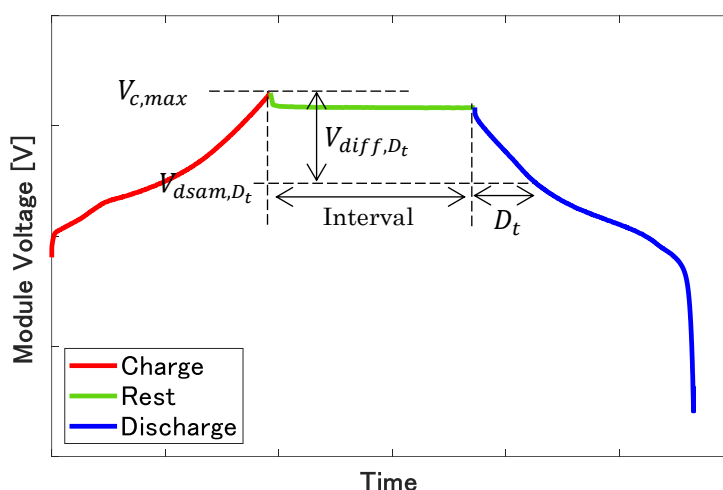


図 2-1 差電圧指標 V_{diff,D_t} の定義[105]

本論文末尾の共通条件(2)に示した定電力充放電サイクル試験データにおける， $V_{diff,20}$ とその時の FCC の値 C_{fc} との関係について調べた結果を図 2-2 に示す． $V_{diff,20}$ と C_{fc} は一次関数的な相関関係になっており，

$$C_{fc} = -6.254V_{diff,20} + 51.234 \quad (9)$$

で近似する事ができた．これは差電圧指標からの FCC 推定が，

- (1) 定電力放電
- (2) モジュール
- (3) 短時間放電での差電圧指標抽出

の各条件に対して適用可能であることを示している．

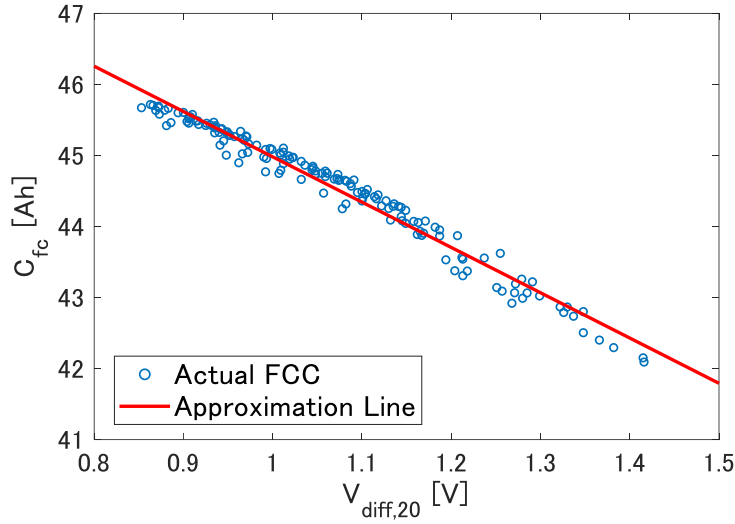


図 2-2 モジュールの定電力充放電サイクル試験における差電圧指標と FCC の関係[105]

式(5)で示したように、充放電エネルギー効率 η_{cd} の推定のためには充電エネルギー E_c と放電エネルギー E_d をそれぞれ推定する必要がある。各充放電サイクルにおける完全放電状態からの累積充電電気量 Q_{ts} 、満充電容量 C_{fc} 、充電率 S_{oc} の関係が

$$Q_{ts} = C_{fc} S_{oc} \quad (10)$$

であることと、充放電曲線と E_c および E_d の関係が図 2-3 のようになっていることから、 E_c と E_d はそれぞれ

$$E_c = C_{fc} \int_0^1 V_c(S_{oc}) dS_{oc} \quad (11)$$

$$E_d = -C_{fc} \int_0^1 V_d(S_{oc}) dS_{oc} \quad (12)$$

と表現する事ができる。ここで、 $V_c(S_{oc})$ は充電電圧、 $V_d(S_{oc})$ は放電電圧である。 $V_c(S_{oc})$ および $V_d(S_{oc})$ は開回路電圧 $V_{oc}(S_{oc})$ と類似の関数になると考える事ができる。 $V_{oc}(S_{oc})$ のモデル式として、例えば 12 次多項式が使用された事例がある[106]。そこで本章検討では、 $V_c(S_{oc})$ および $V_d(S_{oc})$ を 12 次多項式

$$V_c(S_{oc}) = \sum_{i=0}^{12} c_{i+5} S_{oc}^i \quad (13)$$

$$V_d(S_{oc}) = \sum_{i=0}^{12} c_{i+18} S_{oc}^i \quad (14)$$

と表す事にした。初回の定電力充放電サイクルの充放電曲線をモデル式(13)(14)で回帰した結果は表 2.1 および図 2-4 のようになった。この時の $V_c(S_{oc})$ のフィッティング誤差は最

大 0.197 V(0.71 %), 平均 0.019 V(0.06 %)であり, また $V_d(S_{oc})$ のフィッティング誤差は最大 0.545 V(2.06 %), 平均 0.041 V(0.14 %)であった. $V_d(S_{oc})$ が急激に変化する低 S_{oc} 領域のフィッティング誤差がやや大きくなる傾向が見られたが, 全体としては良好にフィッティングできたと考える事ができる.

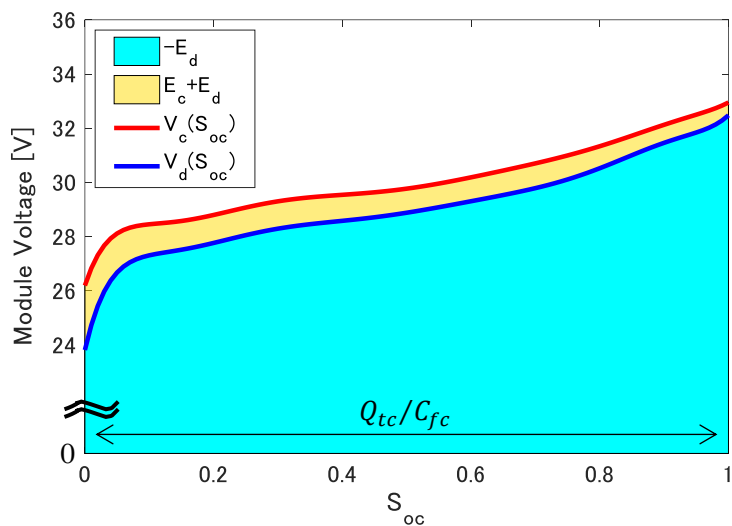


図 2-3 充放電曲線と充放電エネルギーの関係

表 2.1 充放電曲線のモデル式(13)(14)への回帰結果[105]

c_5	c_6	c_7	c_8	c_9	c_{10}	c_{11}
28.101	4.013	8.077	-30.539	10.354	25.669	41.229
c_{12}	c_{13}	c_{14}	c_{15}	c_{16}	c_{17}	
-40.824	-56.797	-6.730	43.883	54.888	-48.427	
c_{18}	c_{19}	c_{20}	c_{21}	c_{22}	c_{23}	c_{24}
32.302	-11.135	12.320	-9.462	-17.463	79.409	-38.307
c_{25}	c_{26}	c_{27}	c_{28}	c_{29}	c_{30}	
-60.465	-33.229	30.992	73.501	68.935	-102.583	

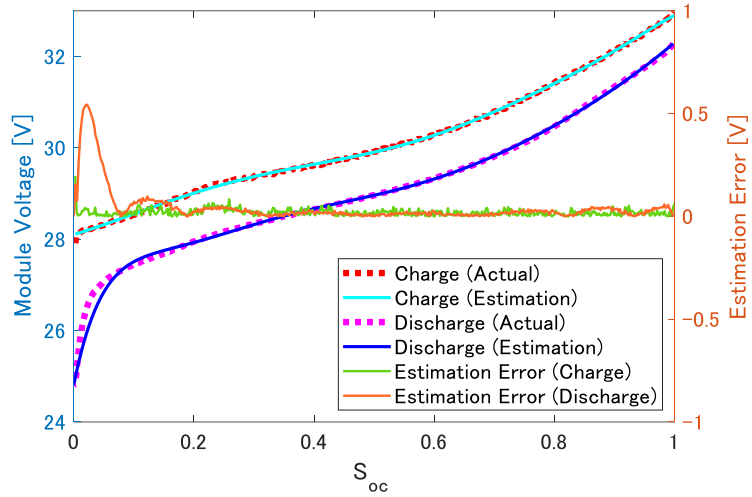


図 2-4 充放電曲線のモデル式(13)(14)への回帰結果[105]

この $V_c(S_{oc})$ および $V_d(S_{oc})$ を、いくつかの離散した S_{oc} において推定し、これら推定値群を式(13)(14)にフィッティングすることを考える。まず、完全放電状態からの充電電流量 Q_c [Ah]および満充電状態からの放電電流量 Q_d [Ah]に対し、それぞれ標本値ベクトル $Q_{c,dig}$ および $Q_{d,dig}$ を定義する。また、これら標本値に対応する $V_c(S_{oc})$ および $V_d(S_{oc})$ の標本値ベクトル $V_{c,dig}$ および $V_{d,dig}$ を併せて定義する。つまり、各ベクトルの標本値の要素数を n_{dig} とすると、各標本値ベクトルの定義は

$$Q_{c,dig} = [Q_{c,1}, Q_{c,2}, \dots, Q_{c,n_{dig}}] \quad (15)$$

$$Q_{d,dig} = [Q_{d,1}, Q_{d,2}, \dots, Q_{d,n_{dig}}] \quad (16)$$

$$V_{c,dig} = [V_{c,1}, V_{c,2}, \dots, V_{c,n_{dig}}] \quad (17)$$

$$V_{d,dig} = [V_{d,1}, V_{d,2}, \dots, V_{d,n_{dig}}] \quad (18)$$

ということになる。

ここで仮説として、式(9)で示した C_{fc} と $V_{diff,20}$ の関係と同様に、 $V_{c,dig}$ および $V_{d,dig}$ と $V_{diff,20}$ が一次関数的相関を示すと考えた。この仮説が正しければ、

$$V_{c,dig} = [A_{c,1}V_{diff,20} + B_{c,1}, A_{c,2}V_{diff,20} + B_{c,2}, \dots, A_{c,n_{dig}}V_{diff,20} + B_{c,n_{dig}}] \quad (19)$$

$$V_{d,dig} = [A_{d,1}V_{diff,20} + B_{d,1}, A_{d,2}V_{diff,20} + B_{d,2}, \dots, A_{d,n_{dig}}V_{diff,20} + B_{d,n_{dig}}] \quad (20)$$

が近似的に成立するはずである。例えば標本値ベクトル $Q_{c,dig}$ および $Q_{d,dig}$ の離散幅を、充

放電試験サンプルの初期 C_{fc} 換算 S_{oc} で約 0.05 となる 2.3 Ah とした場合、各充放電サイクルのデータよりフィッティングした $A_{c,1} \sim A_{c,n_{dig}}$, $B_{c,1} \sim B_{c,n_{dig}}$, $A_{d,1} \sim A_{d,n_{dig}}$, $B_{c,1} \sim B_{c,n_{dig}}$ は表 2.2 のようになった。なお、 $A_{c,j}$, $B_{c,j}$, $A_{d,j}$, $B_{d,j}$, $V_{c,j}$, $V_{d,j}$ はそれぞれ $A_{c,1} \sim A_{c,n_{dig}}$, $B_{c,1} \sim B_{c,n_{dig}}$, $A_{d,1} \sim A_{d,n_{dig}}$, $B_{c,1} \sim B_{c,n_{dig}}$, $V_{c,dig}$, $V_{d,dig}$ の j 番目の要素を表す。

式(13)(14)の 12 次多項式の定数 $c_5 \sim c_{30}$ をフィッティングするためには、 S_{oc} の標本値ベクトルが必要である。従って、式(15)(16)の $Q_{c,dig}$ および $Q_{d,dig}$ の値を変換する必要がある。 $Q_{c,dig}$ および $-Q_{d,dig}$ の各要素が C_{fc} を超えない前提で $n_{dig} = \infty$ と仮定すると、

$$C_{fc} = Q_{c,j} - Q_{d,n_{dig}+1-j} \quad (21)$$

である。ここで $Q_{c,j}$ は $Q_{c,dig}$ の j 番目の要素、 $Q_{d,n_{dig}+1-j}$ は $Q_{d,dig}$ の $n_{dig} + 1 - j$ 番目の要素である。 S_{oc} の標本値ベクトル $S_{oc,dig}$ は式(10)(15)(16)(21)より

$$S_{oc,dig} = \left[\frac{Q_{c,1}}{C_{fc}}, \frac{Q_{c,2}}{C_{fc}}, \dots, \frac{Q_{c,n_{dig}}}{C_{fc}} \right] = \left[\frac{C_{fc} + Q_{d,n_{dig}}}{C_{fc}}, \frac{C_{fc} + Q_{d,n_{dig}-1}}{C_{fc}}, \dots, \frac{C_{fc} + Q_{d,1}}{C_{fc}} \right] \quad (22)$$

である。従って式(13)(14)(17)(18)(22)より、

$$V_{c,j}(S_{oc}) = V_{c,j} \left(\frac{Q_{c,j}}{C_{fc}} \right) = \sum_{i=0}^{12} c_{i+5} \left(\frac{Q_{c,j}}{C_{fc}} \right)^i \quad (23)$$

$$V_{d,j}(S_{oc}) = V_{d,j} \left(\frac{C_{fc} + Q_{d,n_{dig}+1-j}}{C_{fc}} \right) = \sum_{i=0}^{12} c_{i+18} \left(\frac{C_{fc} + Q_{d,n_{dig}+1-j}}{C_{fc}} \right)^i \quad (24)$$

となる。式(23)(24)の C_{fc} の値は式(9)を用いることによって各充放電サイクルで推定可能である。以上により、式(19)(20)(22)で $c_5 \sim c_{30}$ をフィッティングする準備が整った。

表 2.2 充放電電圧 $V_{c,j}$, $V_{d,j}$ と差電圧指標 $V_{diff,20}$ との関係式の係数 $A_{c,j}$, $B_{c,j}$, $A_{d,j}$, $B_{d,j}$ [105]

$Q_{c,j}$	0.0	2.3	4.6	6.9	9.2	11.5	13.8	16.1	18.4	20.7
$A_{c,j}$	-1.0601	0.2121	0.2943	0.3134	0.2432	0.1883	0.2421	0.3472	0.3567	0.2393
$B_{c,j}$	28.547	28.143	28.234	28.412	28.735	29.010	29.132	29.119	29.242	29.504
$Q_{d,j}$	23.0	25.3	27.6	29.9	32.2	34.5	36.8	39.1	41.4	43.7
$A_{c,j}$	0.3353	0.2792	0.3228	0.3762	0.3782	0.4125	0.4579	0.4759	0.6107	0.2178
$B_{c,j}$	29.565	29.803	29.965	30.181	30.442	30.729	31.023	31.376	31.640	32.423
$Q_{d,j}$	-0.0	-2.3	-4.6	-6.9	-9.2	-11.5	-13.8	-16.1	-18.4	-20.7
$A_{d,j}$	-0.9665	-1.0937	-1.2967	-1.3626	-1.1474	-1.0199	-0.9652	-0.9467	-0.9228	-0.7726
$B_{d,j}$	33.208	32.796	32.556	32.162	31.480	31.010	30.659	30.383	30.129	29.741
$Q_{a,j}$	-23.0	-25.3	-27.6	-29.9	-32.2	-34.5	-36.8	-39.1	-41.4	-43.7
$A_{a,j}$	-0.8974	-0.9327	-0.9886	-1.0829	-1.2595	-1.4075	-1.5625	-2.4440	-5.2553	-9.9951
$B_{a,j}$	29.720	29.593	29.488	29.421	29.419	29.361	29.249	29.850	32.233	35.837

$c_5 \sim c_{30}$ のフィッティングは、次の式(25)～(30)で定義できる。なお、 c_c および c_d は係数ベクトルであり、また J_c および J_d はフィッティングのための評価関数である。

$$X_c = \begin{bmatrix} \left(\frac{Q_{c,1}}{C_{fc}}\right)^{12} & \dots & \left(\frac{Q_{c,1}}{C_{fc}}\right)^0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \left(\frac{Q_{c,n_{dig}}}{C_{fc}}\right)^{12} & \dots & \left(\frac{Q_{c,n_{dig}}}{C_{fc}}\right)^0 \end{bmatrix} \quad (25)$$

$$X_d = \begin{bmatrix} \left(\frac{C_{fc} + Q_{d,n_{dig}}}{C_{fc}}\right)^{12} & \dots & \left(\frac{C_{fc} + Q_{d,n_{dig}}}{C_{fc}}\right)^0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \left(\frac{C_{fc} + Q_{d,1}}{C_{fc}}\right)^{12} & \dots & \left(\frac{C_{fc} + Q_{d,1}}{C_{fc}}\right)^0 \end{bmatrix} \quad (26)$$

$$c_c = [c_5, c_6, \dots, c_{17}] \quad (27)$$

$$c_d = [c_{18}, c_{19}, \dots, c_{30}] \quad (28)$$

$$J_c = \|V_{c,dig} - c_c X_c^T\| \quad (29)$$

$$J_d = \|V_{d,dig} - c_d X_d^T\| \quad (30)$$

J_c および J_d を最小にする最適化問題を解くことによって、 $V_c(S_{oc})$ および $V_d(S_{oc})$ を表す式(13)(14)の12次多項式の係数ベクトル c_c および c_d をフィッティングできる。この最小値探索フィッティングは、MATLABの非線形計画法ソルバーである `fminsearch` 関数を用いて行った。

フィッティングした12次多項式の係数ベクトル c_c および c_d に基づき、各充放電サイクルにおける $V_c(S_{oc})$ および $V_d(S_{oc})$ を推定した。この推定結果の S_{oc} を、式(10)に従って C_{fc} を乗ずることで Q_{ts} に変換した。各サイクルにおける Q_{ts} と V_c の関係、および $C_{fc} - Q_{ts}$ と V_d の関係について、推定値と実測値で比較した結果は、図 2-5 および図 2-6 の通りである。実際には1～750サイクルのうち初回サイクルと5の倍数のサイクルである V_c および V_d の推定を実施したが、図 2-5 および図 2-6 では代表的な結果として1, 250, 500, 750サイクルの結果を示している。図 2-5 に示す通り、サイクル劣化に伴う V_c および定電力充電の電流レートの変化は比較的小さくサイクル間の違いがあまり見られなかったが、一方で図 2-6 に示す通り V_d および定電力放電の電流レートの劣化による変化は大きく、サイクル間の違いが明瞭に認められた。充放電曲線いずれにおいても推定値は実測値を良好に近似できていることから、式(19)(20)の仮説が正しいこと、および $V_{diff,20}$ の値から式(13)～(30)の一連の流れによって V_c , V_d を12次多項式に近似推定できることが示された。

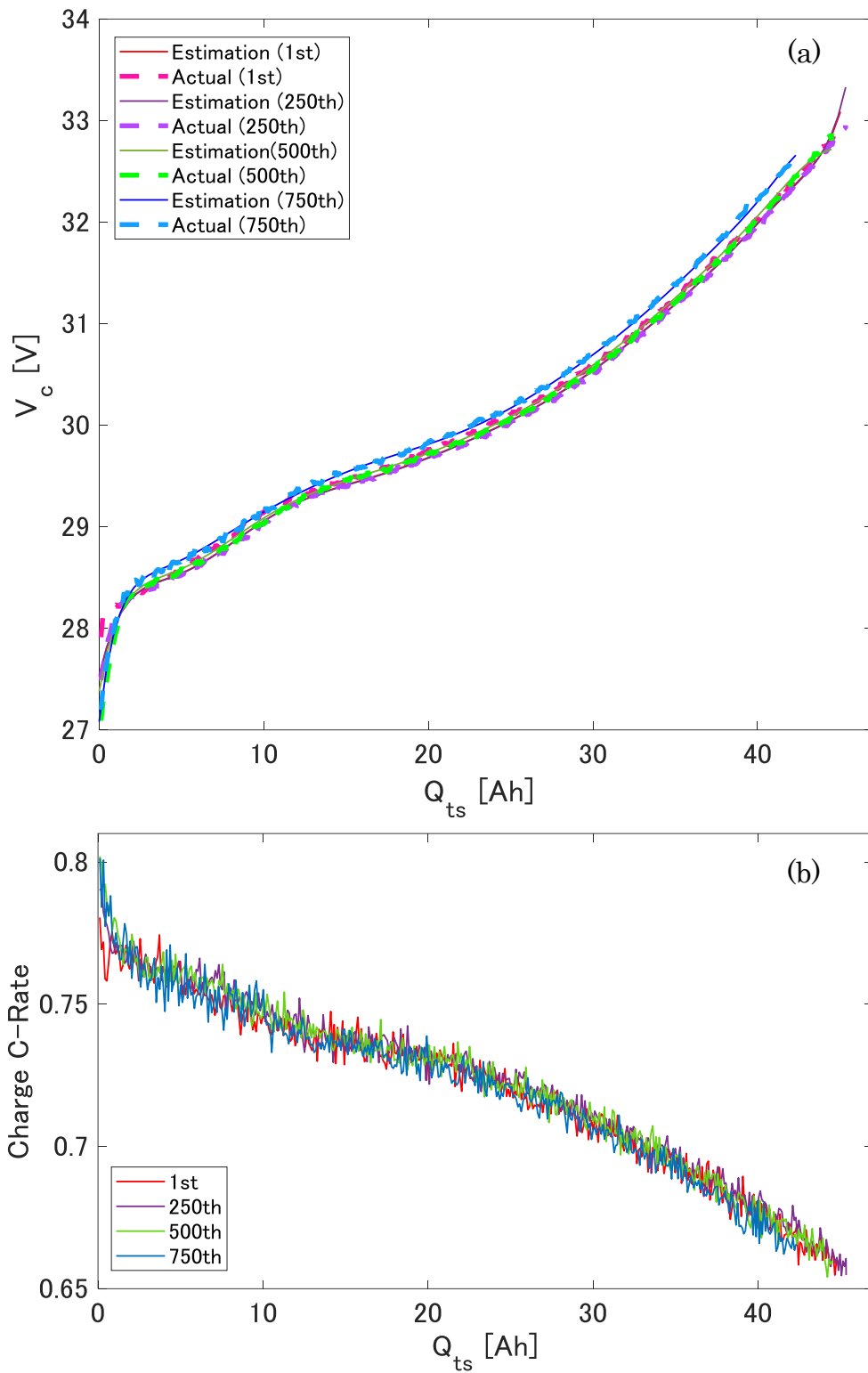


図 2-5 各サイクルにおける (a) Q_{ts} と V_c の関係の推定値と実測値の比較
および (b)充電電流レートの推移[105]

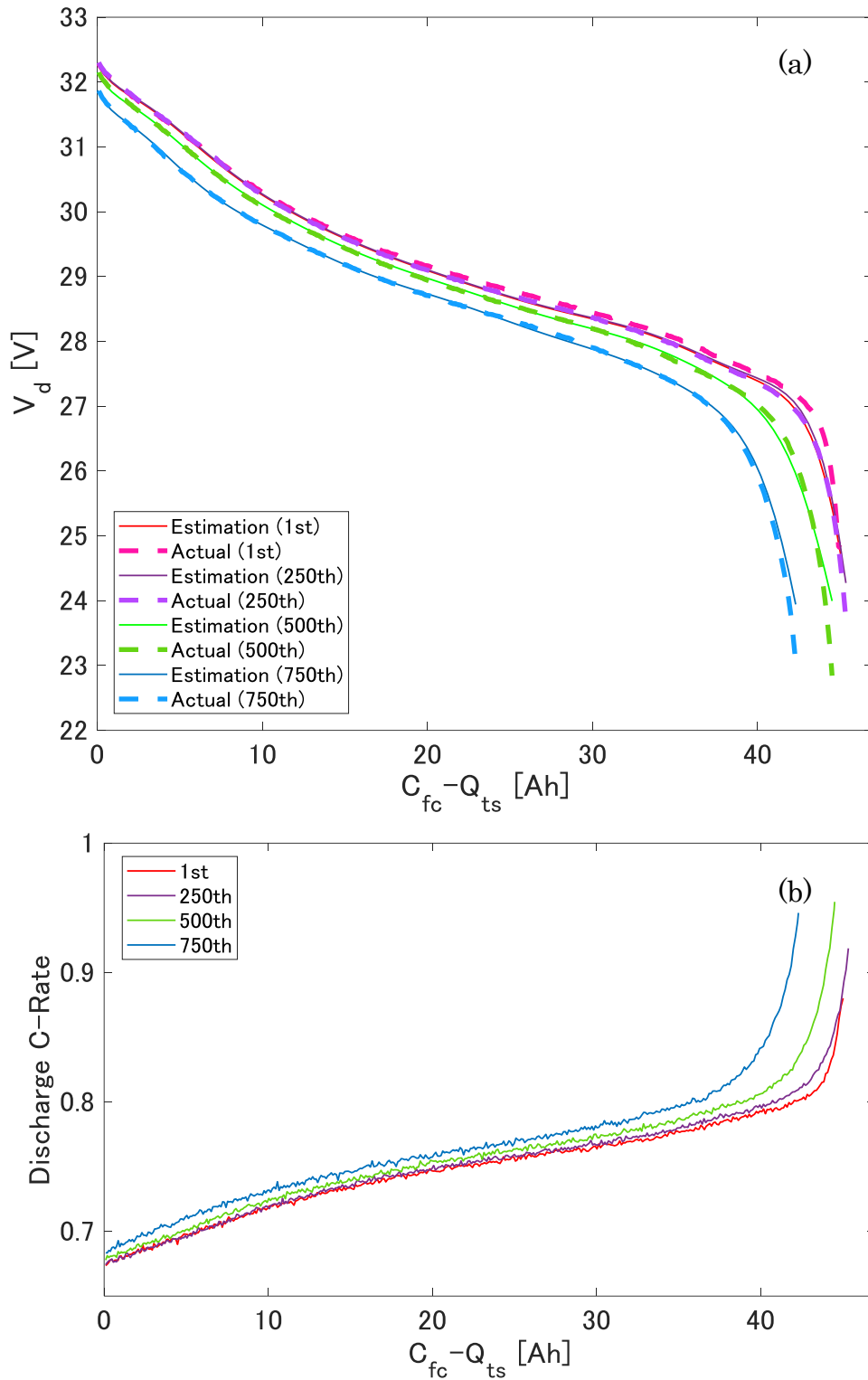


図 2-6 各サイクルにおける (a) $C_{fc} - Q_{ts}$ と V_d の関係の推定値と実測値の比較および (b) 放電電流レートの推移 [105]

図 2-2, 図 2-5, 図 2-6 に示した C_{fc} , V_c , V_d の経時的な変化によって, 各サイクルの充電エネルギー E_c , E_d が変動する. この E_c , E_d はここまで述べた $V_{diff,20}$ からの C_{fc} , V_c , V_d 推定を通じて式(11)(12)で推定できるはずである. これを推定値と実測値の比較によって確認した. 式(13)~(30)までの一連の流れにより V_c , V_d は $V_{diff,20}$ から 12 次多項式に近似推定されるので定法に従って積分を行い, また C_{fc} も式(9)で $V_{diff,20}$ から推定されるので, 式(11)(12)で推定 E_c , E_d を算出して実測値と比較した. 比較結果を図 2-7 に示す. 1~750 サイクルまでの E_c 絶対推定誤差は最大 11.45 Wh (0.89 %), 平均 2.67 Wh (0.20 %)であり, また E_d 絶対推定誤差は最大 16.47Wh (1.34 %), 平均 9.16 Wh (0.71%)となった. 従って各サイクルの E_c , E_d は $V_{diff,20}$ より精度よく推定できる事が確認できた. E_c , E_d を良好に推定

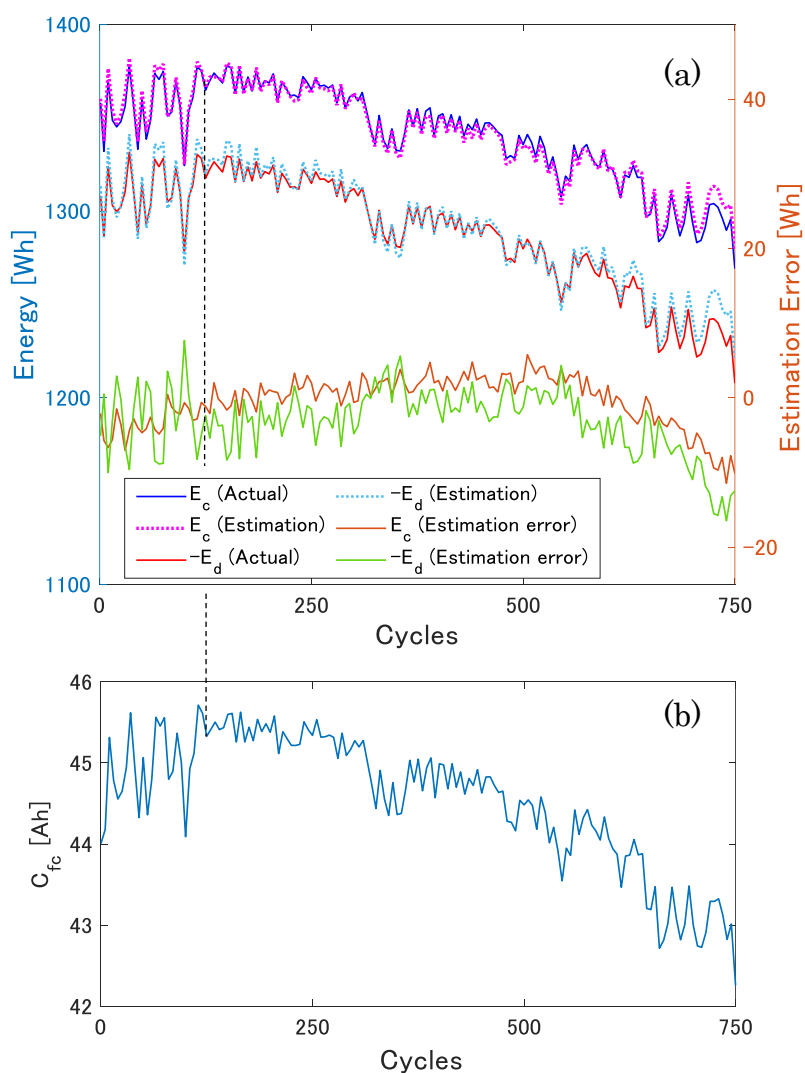


図 2-7 E_c , E_d の推定結果

(a) $V_{diff,20}$ から推定した E_c , E_d 推定値と実測値の比較 (b) C_{fc} の推移[105]

できることにより、式(4)で充放電エネルギー効率 η_{cd} が推定できることは自明である。以上よりリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断を、差電圧指標を用いて実現できることを示した。

なお、図 2-7(a)で特に 1~100 サイクルに認められる比較的大きな E_c 、 $-E_d$ のサイクル間変動は、図 2-7(b)に示す C_{fc} の変動によって生じたと考えられる。この C_{fc} 変動は図 2-8 に示す下限電圧付近の放電曲線末端領域の不規則変動によって生じていた。図 2-8 では、1~150 サイクルまでの放電曲線を太い線で表現するとともに黒から黄色へと階調をつけ、150 サイクルの放電曲線をマゼンタの太い線で表し、150~750 サイクルの放電曲線を細い線で表現するとともにシアンから赤へと階調をつけた。図 2-8(b)において、下限電圧付近の放電末端領域で1~150 サイクルにおける太い線が不安定に変動していること、および150 サイクル以降の細い線が一様にグラフの左下方向にシフトしていく様子が認められた。1~150 サイクルの不安定な変動が図 2-7 の比較的大きな E_c 、 $-E_d$ の変動に寄与したと考えられる。この現象は充放電サイクルを実施する前の保管履歴による可逆的な C_{fc} 誤差がサイクルと共に解消していく過程と推察される[107]。本手法による E_c 、 E_d の推定は、このような不規則変動に対しても追従できていることが図 2-7(a)に示されており、短時間の定電力放電によるリチウムイオン蓄電池モジュール効率劣化診断手法としての有効性を実証したと考えられる。

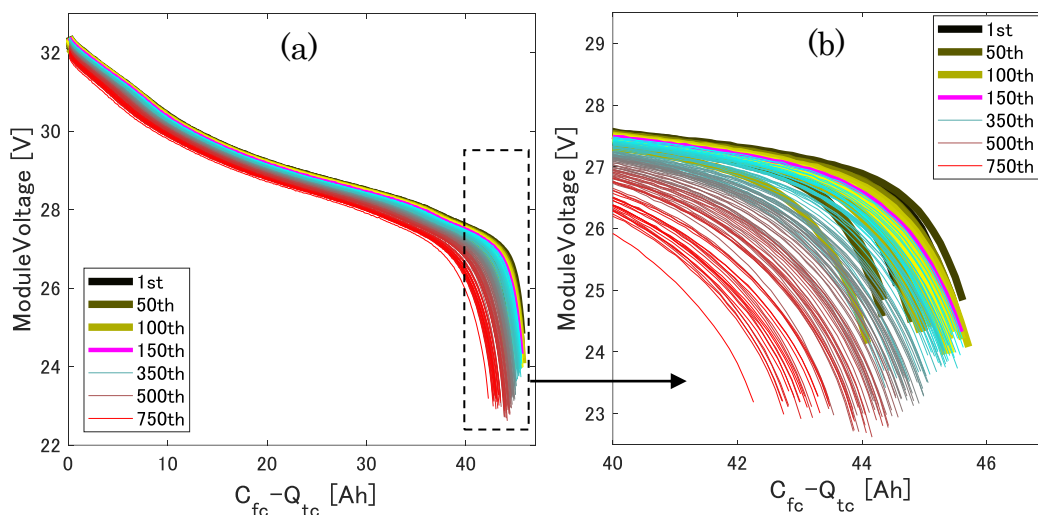


図 2-8 各サイクルの下限電圧付近における放電曲線末端領域の変動

(a) 全体図 (b) 放電末端領域の拡大図[105]

2.3 運用経済性の改善効果

充放電エネルギー E_c , E_d を良好に推定できれば、定置型リチウムイオン蓄電池の経済性を推定することができる。ここでは一例として電気料金が低い時間帯に蓄電池を充電し、高い時間帯に放電する鞍取り運用で経済性推定を検討した。一般に定置型リチウムイオン蓄電池は多数の単電池を直列並列に接続して5~15 kWh(家庭用の場合)程度の容量を持つが、本検討では小スケール条件として本論文末尾の共通条件(2)に記載した8直列モジュール1個あたりの経済性について考慮した。また議論を簡単にするために、定置型リチウムイオン蓄電池への搭載あるいは付帯が想定される直流交流変換装置(パワーコンディショナ)や補機など、リチウムイオン蓄電池以外の部分の電力消費を無視して考えた。

時間帯別に2段階設定された電力料金体系を想定して、料金が低い時間帯の電力量料金を T_{high} [円/kWh], 料金が低い時間帯の電力量料金を T_{low} [円/kWh]とし、またリチウムイオン蓄電池の充放電サイクル1回分の電池容量[kWh]あたり経済メリットを G_{cycle} [円/kWh]とすると、

$$G_{cycle} = -\frac{T_{high}E_d + T_{low}E_c}{1000} \quad (31)$$

が成り立つ。ここでは東京電力エナジーパートナーのスマートライフプラン(2017年12月15日時点)を参考として $T_{high} = 25.33$, $T_{low} = 17.46$ と仮定し、各充放電サイクルにおける差電圧指標 $V_{diff,20}$ から E_c , E_d を推定し、そこから導出された各サイクルの推定 G_{cycle} を、実際の値と比較した。その結果を図2-9に示す。 G_{cycle} は1~750サイクルの間で8.4~9.8円/kWh程度の値を示し、 $V_{diff,20}$ による絶対推定誤差は0.2円/kWh程度の範囲であった。

一般に G_{cycle} が最大になるのは C_{fc} と η_{cd} が高い値になるBOLの時であり、逆に G_{cycle} が最小になるのはEOLの時である。リチウムイオン蓄電池の場合、充放電サイクルによって C_{fc} が初期値の60%まで低下した時を寿命末期と定義する事が通例である[63][64]。

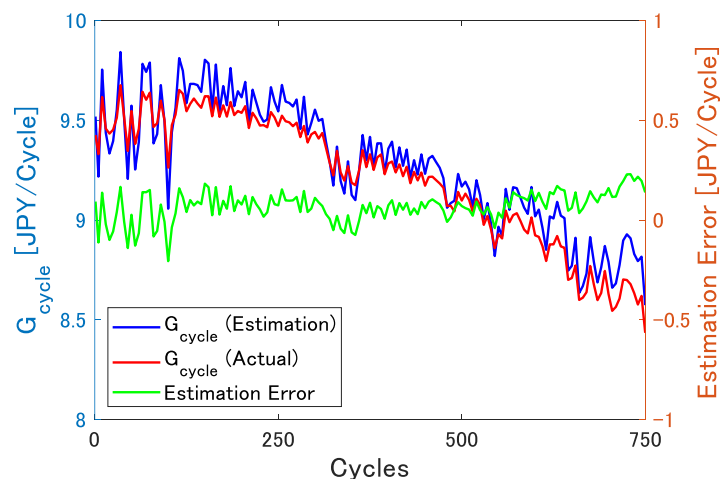


図 2-9 各サイクルの $V_{diff,20}$ から導出した G_{cycle} の推定値と実際の値の比較[105]

ここでリチウムイオン蓄電池の運用経済性を示す指標 SOEc(State of Economy)を提案する．充放電サイクル 1 回分の電池容量[kWh]あたり経済メリットのうち BOL の時を $G_{cycle,BOL}$ 、EOL の時を $G_{cycle,EOL}$ 、現在を $G_{cycle,curr}$ として、SOEc の値 S_{OEc} を

$$S_{OEc} = \frac{G_{cycle,curr} - G_{cycle,EOL}}{G_{cycle,BOL} - G_{cycle,EOL}} \quad (32)$$

と定義する．式(32)の定義上、BOL 時には $S_{OEc} = 1$ であり、EOL 時には $S_{OEc} = 0$ である．時間帯ごとの電力量料金体系およびリチウムイオン蓄電池の劣化傾向が変化しないと仮定すると、 $G_{cycle,BOL}$ 、 $G_{cycle,EOL}$ 、 $G_{cycle,curr}$ を決定づける変数である C_{fc} 、 V_c 、 V_d は全て $V_{diff,20}$ から推定可能である．すなわち、 S_{OEc} は $V_{diff,20}$ から推定する事が可能である． $G_{cycle,BOL}$ および $G_{cycle,curr}$ は、BOL および現在の $V_{diff,20}$ の値を抽出することで問題なく算出可能である． $G_{cycle,EOL}$ の算出では EOL の時の $V_{diff,20}$ の値 $V_{diff,20,EOL}$ が必要であるが、これは EOL の時の FCC の値 $C_{fc,EOL}$ から式(9)に示したように

$$C_{fc,EOL} = c_{31}V_{diff,20,EOL} + c_{32} \quad (33)$$

となる性質を利用して、

$$V_{diff,20,EOL} = \frac{C_{fc,EOL} - c_{32}}{c_{31}} \quad (34)$$

として算出可能である．なお、 c_{31} および c_{32} は任意の定数である．先述した仮定と同様に $T_{high} = 25.33$ 、 $T_{low} = 17.46$ として算出された $G_{cycle,EOL}$ を図 2-10 に示す． $G_{cycle,EOL}$ の値は $C_{fc,EOL}$ の定義によって変化し、その指標は BOL 時の FCC の値 $C_{fc,BOL}$ に対する比率 $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL}$ として一般に定義されるので、図 2-10 では横軸を $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL}$ 、縦軸を $G_{cycle,EOL}$ として示している．既に述べたように、通例では $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL} = 0.6$ とする場合が多い[63][64]．

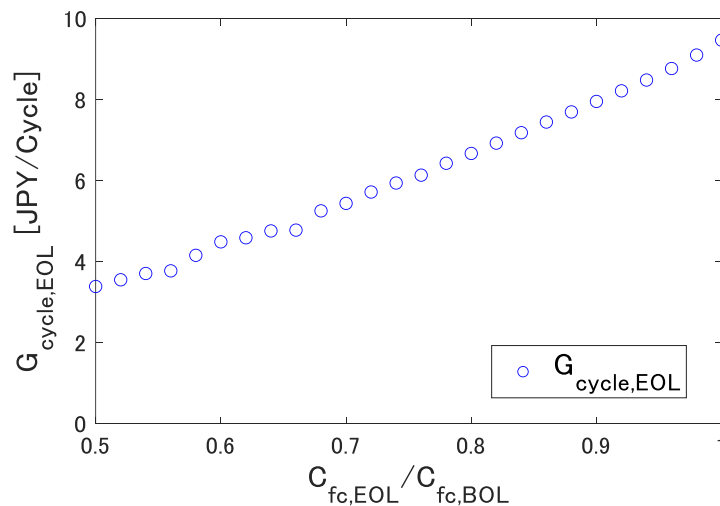


図 2-10 $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL}$ に対する $G_{cycle,EOL}$ の傾向[105]

$V_{diff,20}$ から算出した $G_{cylce,BOL}$, $G_{cylce,EOL}$, $G_{cylce,curr}$ と式(32)から S_{OEc} を導出する事ができる。 $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL}$ の値に応じて $V_{diff,20}$ と S_{OEc} の関係は変化する。図 2-11 に $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL}$ の値を 0.6, 0.7, 0.8 とした場合の $V_{diff,20}$ と S_{OEc} の関係を示す。この図は、 $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL}$ を定義することによって、 $V_{diff,20}$ が S_{OEc} を決定づける事を表している。つまり、図 2-1 に示した簡便な手法によって得られる差電圧指標 $V_{diff,20}$ は、間接的に定置型リチウムイオン蓄電池の運用経済性の指標になるとともに、バッテリーアグリゲーションの DER として多数分散設置された定置型リチウムイオン蓄電池の間で S_{OEc} 値を比較し、より経済的なりチウムイオン蓄電池を選び出すための手段になり得る、と考える事ができる。

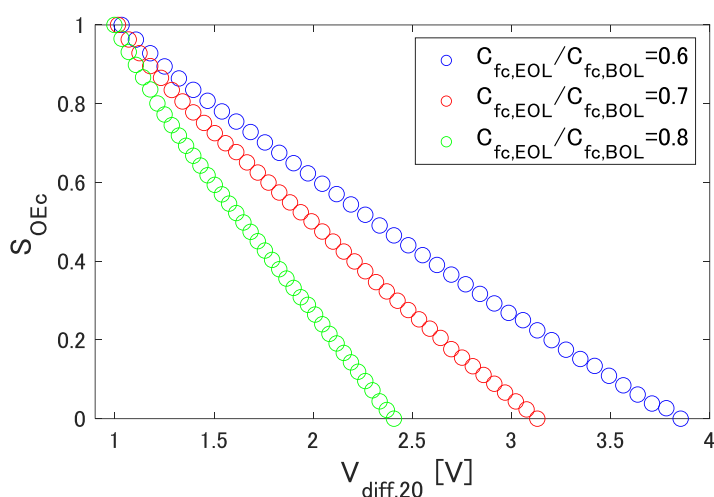


図 2-11 $V_{diff,20}$ と S_{OEc} の関係[105]

ここで仮に、 $C_{fc,EOL}/C_{fc,BOL} = 0.8$ 、本論文末尾の共通条件(2)に記載したリチウムイオン蓄電池 8 直列モジュールの EOL 到達期間が 20 年、1 サイクル/日の運用、 $T_{high} = 25.33$, $T_{low} = 17.46$, C_{fc} が BOL から EOL までルート則[108]に基づいて減少していく、とする。このとき BOL から EOL までの推定経済メリットは約 4.1 万円/kWh である。定置型リチウムイオン蓄電池の価格に関して参考文献によると 9 万円/kWh となっており[97]、推定経済メリットが価格に到達していない。そこで例えば太陽光発電余剰電力対策[109]からも経済メリットを得る必要があり、その際に $SOEc$ を用いて定置型リチウムイオン蓄電池を選択的運用した場合の効果について以下で分析する。

本論文末尾の共通条件(2)に記載したリチウムイオン蓄電池 8 直列モジュールを用いた 10 kWh の定置型蓄電池が 100 台、BOL から EOL まで均等に分布してバッテリーアグリゲーションに含まれているとする。この時の 100 台の蓄電池群の S_{OEc} ヒストグラムは図 2-12 のようになっている。太陽光発電余剰電力対策の運用は、定置型リチウムイオン蓄電池の容量 1 kWh あたり平均 750 Wh/日 受け入れるものとする。太陽光発電余剰電力対策では、その時の卸電力取引価格で売れる電気を売らずに充電に使うと見なすことができ、

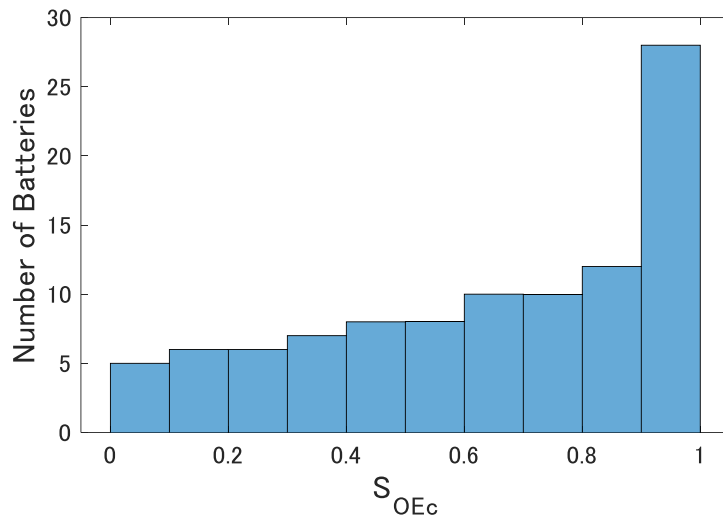


図 2-12 バッテリーアグリゲーションに含まれる 100 台の定置型蓄電池の S_{OEc} ヒストグラム[105]

これは卸電力を購入していることと同義である。またこの充電した太陽光発電余剰電力は、小売電力料金が低い時間帯に放電される。従ってここで考える T_{high} は先述と同様に 25.33 であり、一方 T_{low} は卸電力価格である。ここでは 2017 年の JEPX システムプライスの平均値である 8.89 とした[110]。また直流交流変換装置の電力効率は往復で 0.9 とした。図 2-12 に示す高 S_{OEc} の蓄電池を優先的に太陽光発電余剰電力対策運用すると、BOL から EOL までの推定経済メリットは約 9.0 万円/kWh(運用平均 $S_{OEc} = 0.86$)となって、蓄電池価格に到達する。一方、 S_{OEc} 値を考慮せずランダムに太陽光発電余剰電力対策運用を実施すると、推定経済メリットは約 8.8 万円/kWh(運用平均 $S_{OEc} = 0.64$)に低下する。以上のように、SOEC すなわちリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断で得られる情報に基づいて選択的蓄電池運用を実施することで、リチウムイオン蓄電池群の運用経済性を向上できることが示された。

2.4 まとめ

バッテリーアグリゲーションの DER として用いられる定置型リチウムイオン蓄電池の実用的運用を考慮した条件、すなわちモジュールに対する短時間の定電力放電によって差電圧指標 $V_{diff,20}$ を抽出し、そこから効率劣化診断で充放電エネルギー効率を推定できることを示した。またこの効率劣化診断で得られた情報に基づいて、バッテリーアグリゲーションの DER として運用される多数のリチウムイオン蓄電池を適切に稼働させることで、その運用経済性を向上する効果がある事を解明した。

第3章 実用的な運用経済性改善手法

3.1 はじめに

バッテリーアグリゲーションの DER として導入されているリチウムイオン蓄電池は、例えば太陽光発電余剰電力の状況に合わせて充電し、電力需要の状況に合わせて放電することになる。パワーコンディショナなど直流交流変換装置の出力と効率の関係[111]を踏まえると、充放電入出力をある程度の値に揃えるインセンティブが働くと考えられるが、それでもリチウムイオン蓄電池の入出力が外部環境によって決定され制御される事はほぼ間違いない。従って、リチウムイオン蓄電池の入出力、すなわち充放電電流と充放電電力は、各充放電サイクルにおいて同じ条件になり得ない。

1.3節で述べたように、充放電エネルギー損失 L_{cd} は主にリチウムイオン蓄電池の電気抵抗および分極抵抗に起因した発熱によって生じる。リチウムイオン蓄電池の充放電に伴う熱収支としては主に電気抵抗に伴うジュール熱、分極抵抗に伴う分極発熱、および電極反応に伴う反応熱が挙げられる。ただし反応熱は充電時に吸熱し、放電時に放熱して相殺されるので、リチウムイオン蓄電池の外部にエネルギーとして放出される熱はジュール熱と分極発熱である。ジュール熱と分極発熱の合計発熱 H_{jp} [J/s]と、電気抵抗と分極抵抗の合計抵抗 R_{ep} [Ω]の間には、

$$H_{jp} = c_{33} I_{c,d}^2 R_{ep} \quad (35)$$

の関係が成立する[42]。ここで、 c_{33} は任意の定数であり、 $I_{c,d}$ は充放電電流[A]である。また、式(5)は

$$H_{jp} \doteq L_{cd} = E_c + E_d \quad (36)$$

となることは自明である。

各充放電サイクルで充放電電流が異なると式(35)により H_{jp} の値が変わるので、式(4)(36)より充電エネルギー E_c 、放電エネルギー E_d 、充放電エネルギー効率 η_{cd} が変化する。そうすると式(31)で算出される経済メリット G_{cycle} が変わり、結果として式(32)の経済性指標 S_{OEc} の変化に帰着する。図 2-1での差電圧指標 V_{diff,D_t} 抽出は、放電時間 $D_t = 20$ 程度の短時間であれば毎回の放電出力を一定にすることも可能である。しかし図 2-11の $V_{diff,20}$ と S_{OEc} の関係は変わるので、単純に S_{OEc} を運用経済性向上の指標に適用する事が困難になる。このように、第 2 章の $V_{diff,20}$ を用いた蓄電池劣化モデルには実用上の課題が残されていた。

そこで本章検討では、効率劣化診断に用いる蓄電池劣化モデル式に $I_{c,d}$ を導入し、任意の充放電入出力にも適用できる実用的な効率劣化診断手法として検討した[112]。またこの蓄電池劣化モデルを用いて、具体的なバッテリーアグリゲーション運用経済性向上シミュレーションを実施し、効率劣化診断の効果を確認した[113]。なお、本論文末尾の共通条件(1)に記載の通り、電流・電力の値について充電を正、放電を負と定義した。

3.2 充放電電流を要素に持つ蓄電池劣化モデル

充電電圧 V_c および放電電圧 V_d の劣化モデルを検討するため、図 1-12 と図 1-18 を合成した図 3-1 のイメージについて考える。簡単のため等価回路の成分 $R_0 \sim R_2$ および C_1, C_2 をまとめて内部インピーダンス Z_{eq} とする。このとき、充電器およびリチウムイオン蓄電池の接続端子間電圧すなわち充電電圧 V_c と、負荷およびリチウムイオン蓄電池の接続端子間電圧すなわち放電電圧 V_d は、リチウムイオン蓄電池の起電力 E_{mf} [V]を含む式

$$V_c = E_{mf} + I_c |Z_{eq}| \quad (37)$$

$$V_d = E_{mf} + I_d |Z_{eq}| \quad (38)$$

で表すことができる。ここで I_c は充電電流、 I_d は放電電流である。

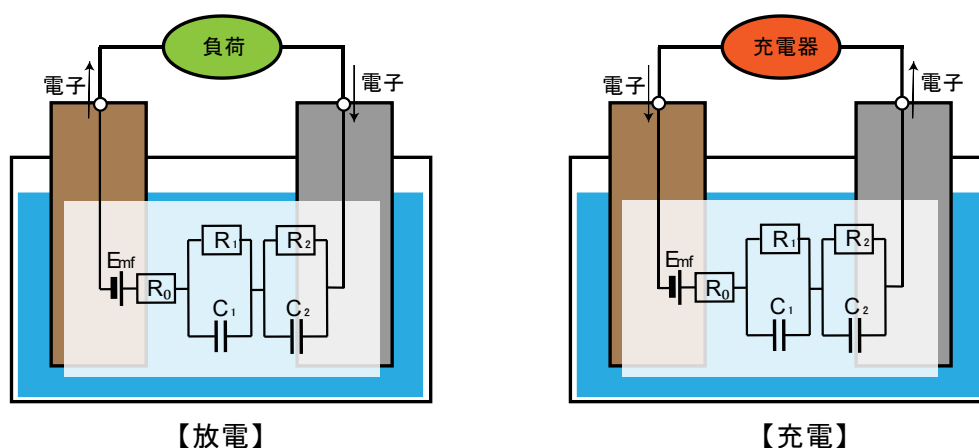


図 3-1 リチウムイオン蓄電池の起電力と内部インピーダンスのイメージ

リチウムイオン蓄電池の起電力は、電気化学的な平衡状態における正極と負極の電位差として定義される。一方、類似の概念として開回路電圧 OCV が挙げられる。OCV はリチウムイオン蓄電池の端子あるいは端子に接続する回路を開放状態とし、十分に緩和[69]した状態で示す蓄電池の端子間電圧の事である。このときリチウムイオン蓄電池の外部の回路には電流は流れていないが、蓄電池内部ではわずかながら化学反応が生じており、厳密には電気化学的平衡状態となっている。例えば、リチウムイオン蓄電池を長期にわたり保管することでカレンダー劣化が進む事実から、この微量の化学反応の存在が推察される。とはいえ、発熱量基準で見ればこのような副反応は充放電サイクルに伴う化学反応と比較してごく微量である[42]。従って $E_{mf} \cong V_{oc}$ と考えて差し支えないと考えられる。また、内部インピーダンス Z_{eq} は一定の過渡応答を示すと思われるが、太陽光発電余剰電力対策のような一定の連続時間充放電を想定すると、過渡応答による電圧変化は V_{oc} の値に対して大きな割合にはならない。そこで議論を簡単にするために $|Z_{eq}| \cong R_{int}$ と考え、直流内部抵抗と

して扱った．以上を踏まえて本章以降の検討では式(37)(38)を

$$V_c = V_{oc} + I_c R_{int} \quad (39)$$

$$V_d = V_{oc} + I_d R_{int} \quad (40)$$

として扱う．

充放電電流 I_c , I_d は外部環境により設定される任意の指示値であり，また V_{oc} および R_{int} は S_{oc} の関数である[72]ことを踏まえると，式(39)(40)から式(11)(12)を

$$E_c = C_{fc} \int_0^1 \{V_{oc}(S_{oc}) + I_c(S_{oc})R_{int}(S_{oc})\}dS_{oc} \quad (41)$$

$$E_d = -C_{fc} \int_0^1 \{V_{oc}(S_{oc}) + I_d(S_{oc})R_{int}(S_{oc})\}dS_{oc} \quad (42)$$

と書き換える事ができる．これらの式から，

- (1) FCC の値 C_{fc}
- (2) SOC に対する OCV の関数 $V_{oc}(S_{oc})$
- (3) SOC に対する R の関数 $R_{int}(S_{oc})$

の3パラメータを推定できれば， E_c および E_d を算出できる．本検討では8直列モジュールを用いており， C_{fc} , $V_{oc}(S_{oc})$, $R_{int}(S_{oc})$ は全て8直列モジュールにおける値とする．

ここで，本論文末尾の共通条件(2)に記載した条件での充放電サイクル試験によって $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ がどのように経時変化したかを確認する．定電流充放電サイクル試験の場合は単純に，

$$V_{oc}(S_{oc}) = \frac{V_c(S_{oc}) - V_d(S_{oc})}{2} \quad (43)$$

$$R_{int}(S_{oc}) = \frac{V_c(S_{oc}) - V_{oc}(S_{oc})}{I_c(S_{oc})} = \frac{V_d(S_{oc}) - V_{oc}(S_{oc})}{I_d(S_{oc})} \quad (44)$$

と考える事ができる．しかし本研究では定電力充放電サイクル試験を実施しており，同じSOCの時の充電電流と放電電流が異なるため，式(43)が適用できない．一方，式(44)は定電力充放電でも成立し，充放電サイクルの定電力値を P_{cycle} とすると

$$|P_{cycle}| = V_c(S_{oc})I_c(S_{oc}) = -V_d(S_{oc})I_d(S_{oc}) \quad (45)$$

が成り立つ事から，式(44)(45)を $V_{oc}(S_{oc})$ について解いて

$$V_{oc}(S_{oc}) = \frac{V_c(S_{oc})^2 + V_d(S_{oc})^2}{V_c(S_{oc}) + V_d(S_{oc})} \quad (46)$$

となる．また，式(45)を式(44)に代入して

$$R_{int}(S_{oc}) = \frac{V_c(S_{oc})\{V_c(S_{oc}) - V_{oc}(S_{oc})\}}{|P_{cycle}|} = \frac{V_d(S_{oc})\{V_{oc}(S_{oc}) - V_d(S_{oc})\}}{|P_{cycle}|} \quad (47)$$

となる．あるいは $|P_{cycle}|$ を使わずに式(45)(46)を式(44)に代入して

$$R_{int}(S_{oc}) = \frac{V_c(S_{oc}) - V_d(S_{oc})}{I_c(S_{oc}) - I_d(S_{oc})} \quad (48)$$

となる．また，式(39)あるいは式(40)に式(48)を代入して

$$V_{oc}(S_{oc}) = \frac{I_c(S_{oc})V_d(S_{oc}) - I_d(S_{oc})V_c(S_{oc})}{I_c(S_{oc}) - I_d(S_{oc})} \quad (49)$$

となる．式(46)(49)のいずれかにより $V_{oc}(S_{oc})$ を算出でき，また式(47)(48)のいずれかにより $R_{int}(S_{oc})$ を算出できる．実際に $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ の変化を確認するためには，0.01 程度の SOC 分解能でそれぞれの値を抽出すれば問題ない．ただし，充放電サイクル試験ではデジタルなデータサンプリングを行うので，得られた時系列データのままで充電データと放電データで同一の SOC に対する計測値を得ることができない．そこで SOC の標本値ベクトル $S_{oc,dig} = [0.01, 0.02, \dots, 0.99]$ の各要素に対し，その近傍で $S_{oc,dig}$ の l 番目の要素である SOC の狙い値 $S_{oc,l}$ を挟む関係にある 2 点 $S_{oc,l,low}$ および $S_{oc,l,high}$ に対応する充放電時系列データ(図 3-2)を抽出し，線形補間を行った．すなわち

$$V_{c,d}(S_{oc,l}) = \frac{V_{c,d}(S_{oc,l,low})\Delta S_{oc,l,high} + V_{c,d}(S_{oc,l,high})\Delta S_{oc,l,low}}{S_{oc,l,high} - S_{oc,l,low}} \quad (50)$$

$$I_{c,d}(S_{oc,l}) = \frac{I_{c,d}(S_{oc,l,low})\Delta S_{oc,l,high} + I_{c,d}(S_{oc,l,high})\Delta S_{oc,l,low}}{S_{oc,l,high} - S_{oc,l,low}} \quad (51)$$

$$\Delta S_{oc,low} = S_{oc,l} - S_{oc,l,low} \quad (52)$$

$$\Delta S_{oc,high} = S_{oc,l,high} - S_{oc,l} \quad (53)$$

として $V_{c,d}$ および $I_{c,d}$ を算出した．ここで $V_{c,d}$ は V_c と V_d を， $I_{c,d}$ は I_c と I_d をそれぞれまとめた概念である．なお， $S_{oc,l,low}$ および $S_{oc,l,high}$ を抽出する都合により，ここでは $S_{oc,dig}$ に 0 と 1 を含むことができない．0 の場合は $S_{oc,l,low}$ を，1 の場合は $S_{oc,l,high}$ を，それぞれ充放電時系列データから抽出できないためである．

以上によって各充放電サイクル時系列データから抽出された，サイクルに伴う $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ の変化を図 3-3 に示す．この図では，1~750 サイクルにおける $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ の変化を 10 サイクル毎にグラフ化し，さらにサイクル進展と共に黒から赤へと徐々に階調をつけて表現している．図 3-3(a)ではサイクルに伴い $V_{oc}(S_{oc})$ は徐々に低下し，図 3-3(b)

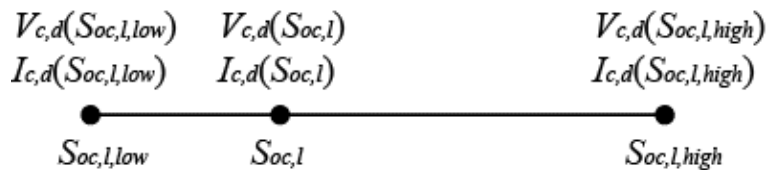


図 3-2 標本値ベクトル $S_{oc,dig}$ の要素 $S_{oc,l}$ と近傍の時系列データ [114]

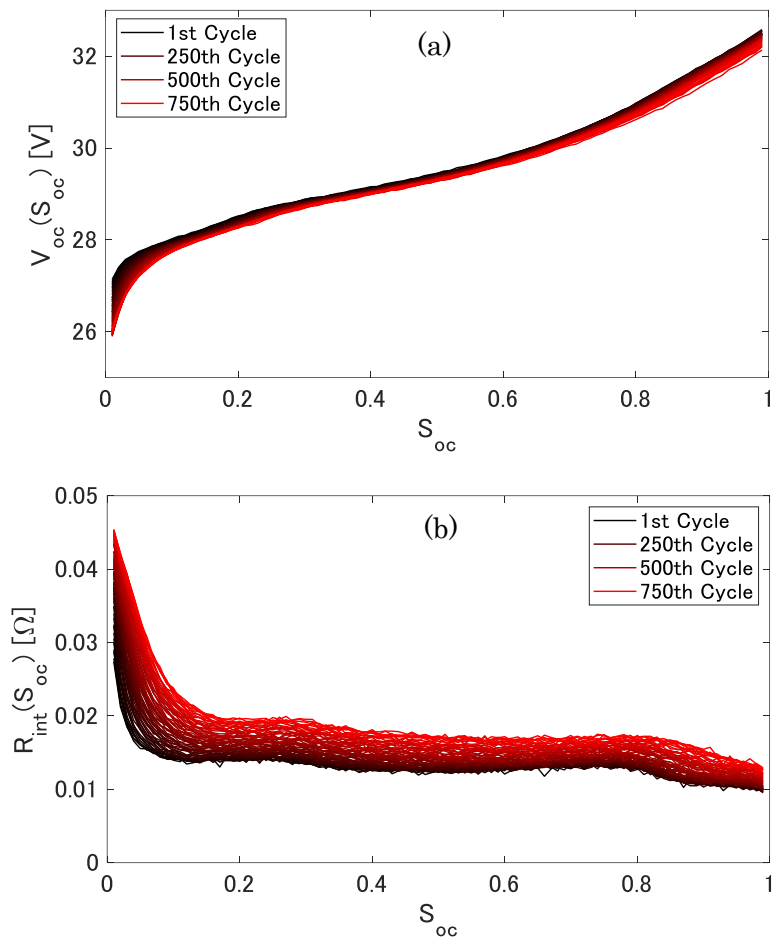


図 3-3 充放電サイクルに伴う経時変化 (a) $V_{oc}(S_{oc})$ および (b) $R_{int}(S_{oc})$ [112]

では $R_{int}(S_{oc})$ は徐々に増加している様子がわかる。

この 8 直列リチウムイオン蓄電池の $V_{oc}(S_{oc})$ の経時変化について考察する。リチウムイオン蓄電池の充放電は上下限電圧により制御するが、モジュールでは構成する単電池のうちの一つが上下限電圧に到達したときに充放電が停止する。従って、モジュールを構成する単電池の多くは充電停止あるいは放電停止の時に上下限電圧に到達しない。モジュールを構成する単電池の一つが上限電圧あるいは下限電圧に到達した時の各単電池電圧の平均および 2 シグマ区間(95%信頼区間)の、充放電サイクル進展に伴う推移を図 3-4 に示す[114]。まず、図 3-4(a)の上限電圧到達時について見ると、2 シグマ区間の上端はほぼ上限電圧の 4.15 V であるが、下端は充放電サイクルとともに徐々に低下し、これに伴って平均電圧が低下していく。このデータは、上限電圧到達時の各単電池電圧の分布が徐々に低電圧側に移動していることを示している。次に、図 3-4(b)の下限電圧到達時について見ると、2 シグマ区間が充放電サイクルとともに徐々に下がっていくが、下限電圧である 2.7 V に到達しない。これは低 SOC 領域で各 OCV の変化が大きいことにより、モジュールの単電池の

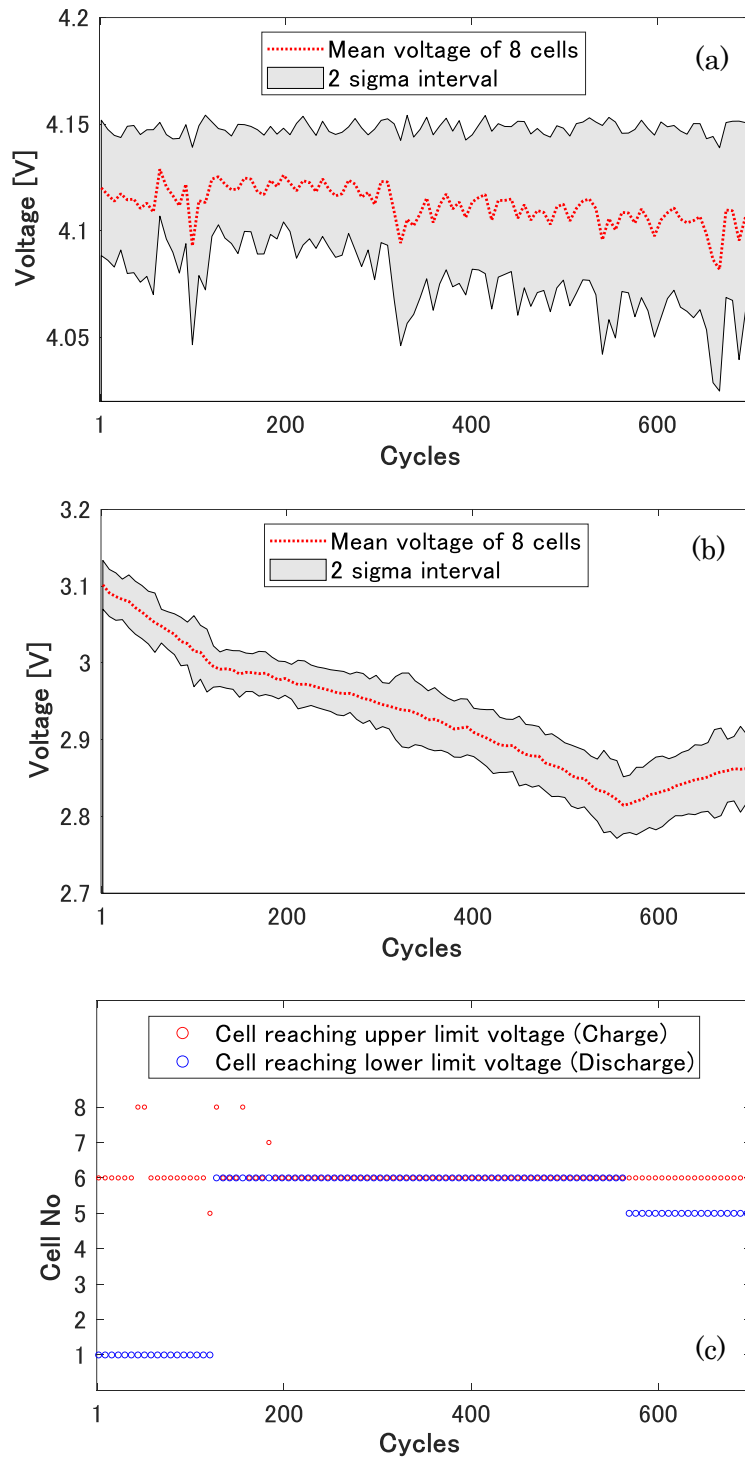


図 3-4 各充放電サイクルにおける (a) 上限電圧到達時の各単電池の平均電圧と 2 シグマ区間 (a) 下限電圧到達時の各単電池の平均電圧と 2 シグマ区間 (c) 上下限電圧に到達した単電池 [114]

うち一部だけが急激に電圧を下げるためだと考えられる。2 シグマ区間の経時的な低電圧方向移動は、この急激な電圧低下を示す単電池の数が増加していることを示している。なお図 3-4(b)には平均電圧の推移に明瞭な変化点(127, 568 サイクル)が存在する。これは図 3-4(c)に示した下限電圧に到達する単電池の入れ替わりによって生じている。変曲点は存在するがサイクル全体を通じて単電池の平均電圧は低下傾向で推移している。このような各単電池の平均電圧の経時変化がモジュールの $V_{oc}(S_{oc})$ の経時的低下につながったと考えられる。

以上で述べた OCV と R, および FCC の 3 パラメータを、経時変化も含めて推定することができれば、式(41)(42)によって E_c および E_d を推定算出し、充放電エネルギー効率 η_{cd} を導出できる。そこで、以降では FCC, OCV, R を差電圧指標 V_{diff,D_t} から推定する蓄電池劣化モデルの構築を検討する。

式(41)(42)で推定が必要な 3 パラメータのうち、FCC に関しては式(9)で差電圧指標 $V_{diff,20}$ から推定する手法を既に提案している。一方、Liu らは FCC と差電圧指標の関係を

$$C_{fc} = c_{34}V_{diff,D_t}^{c_{36}} + c_{35} \quad (54)$$

と定義した。式(9)と式(54)の違いは V_{diff,D_t} の指数 c_{36} であり、これは Box-Cox 変換によるデータセットの正規分布化[115]を試みたものである。

次に、 $V_{oc}(S_{oc})$ は、1 つ目のモデル式[82]として

$$V_{oc}(S_{oc}) = K_{ocv,1} + \frac{K_{ocv,2}}{S_{oc}} + K_{ocv,3}S_{oc} + K_{ocv,4} \ln(S_{oc}) + K_{ocv,5} \ln(1 - S_{oc}) \quad (55)$$

2 つ目のモデル式[116]として

$$V_{oc}(S_{oc}) = K_{ocv,6} + K_{ocv,7}\{1 - e^{-K_{ocv,8}S_{oc}}\} + K_{ocv,9} \left\{1 - e^{-\frac{K_{ocv,10}}{1-S_{oc}}}\right\} + K_{ocv,11}S_{oc} \quad (56)$$

3 つ目のモデル式[72]として

$$V_{oc}(S_{oc}) = K_{ocv,12} + K_{ocv,13}e^{-K_{ocv,14}S_{oc}} + K_{ocv,15}S_{oc} + K_{ocv,16}S_{oc}^2 + K_{ocv,17}S_{oc}^3 \quad (57)$$

4 つ目のモデル式[117]として

$$V_{oc}(S_{oc}) = \sum_{i=0}^6 K_{ocv,18+i}S_{oc}^i \quad (58)$$

5 つ目のモデル式[118]として

$$V_{oc}(S_{oc}) = K_{ocv,25} + K_{ocv,26} \frac{1}{1 + e^{K_{ocv,27}(S_{oc}-K_{ocv,28})}} + K_{ocv,29} \frac{1}{1 + e^{K_{ocv,30}(S_{oc}-K_{ocv,31})}} \\ + K_{ocv,32} \frac{1}{1 + e^{K_{ocv,33}(S_{oc}-1)}} + K_{ocv,34} \frac{1}{1 + e^{K_{ocv,35}S_{oc}}} + K_{ocv,36}S_{oc} \quad (59)$$

が事例として挙げられる。なお、 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,36}$ は各モデル式の係数である。

また $R_{int}(S_{oc})$ のモデル式は報告自体が少ないが、事例として、

$$R_{int}(S_{oc}) = \sum_{i=0}^6 K_{R,1+i} S_{oc}^i \quad (60)$$

が挙げられる[117]. なお, $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ はモデル式の係数である.

本章では仮説として, 式(54)に示したような差電圧指標のべき乗 V_{diff,D_t}^λ の一次関数から 3 パラメータのモデル式各係数を推定可能である, と考えた. すなわち,

$$K_{ocv,n_{ocv}} \doteq c_{3n_{ocv}+34} V_{diff,D_t}^{c_{3n_{ocv}+36}} + c_{3n_{ocv}+35} \quad \text{ただし } n_{ocv} = 1, 2, \dots, 36 \quad (61)$$

$$K_{R,n_R} \doteq c_{3n_R+142} V_{diff,D_t}^{c_{3n_R+144}} + c_{3n_R+143} \quad \text{ただし } n_R = 1, 2, \dots, 7 \quad (62)$$

が成り立つと考えた. ここで, $c_{37} \sim c_{165}$ は任意の定数である. 仮説検証のため, C_{fc} および $K_{ocv,n_{ocv}}$, K_{R,n_R} の各係数と, V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値 $|r_p|$ を調べた. C_{fc} と V_{diff,D_t}^λ の $|r_p|$ は各サイクルの値をもとに MATLAB の `corrcoef` 関数を用いて算出した. また, $K_{ocv,n_{ocv}}$, K_{R,n_R} の各係数は各サイクルにおける $V_{oc}(S_{oc})$ および $R_{int}(S_{oc})$ の値をもとに, MATLAB の非線形計画法ソルバー `fminsearch` によってサイクル毎にフィッティングした. このフィッティング結果と V_{diff,D_t}^λ の $|r_p|$ も MATLAB の `corrcoef` 関数を用いて算出した. $|r_p|$ 算出の際は, $-5 \leq \lambda \leq 5$ (ただし $\lambda \neq 0$) および $10 \leq D_t \leq 500$ [s] の範囲で, かつ λ と D_t の分解能をそれぞれ 0.25 および 10 [s] として組合せ条件を掃引した.

まず, FCC のモデル式(54)についての検討結果を図 3-5 に示す. このモデル式は検討条件全体で良好な相関を示しており, 最良条件は表 3.1 に示す通りであった.

次に, OCV のモデル式(55)~(59)についての検討結果を示す. 図 3-6 はモデル式(55)の係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値 $|r_p|$ を示したものである. モデル式(55)の各

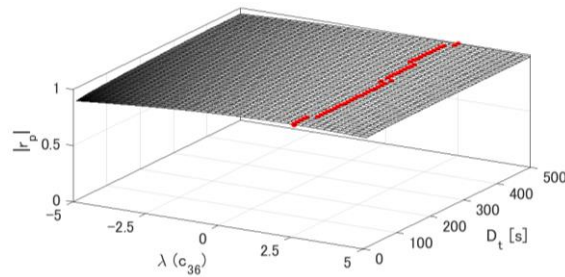


図 3-5 FCC のモデル式(54)の各 D_t , λ における C_{fc} と V_{diff,D_t}^λ の相関係数絶対値 $|r_p|$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す[112]

表 3.1 モデル式(54)の C_{fc} と V_{diff,D_t}^λ との相関の最良条件

	D_t	λ	$ r_p $
C_{fc}	330	2.5	0.992

係数において最も良好な結果は表 3.2 に示すとおりであった。 $K_{ocv,1}$, $K_{ocv,3}$, $K_{ocv,4}$ の相関が良好であるのに対して, $K_{ocv,2}$, $K_{ocv,5}$ はあまり相関がない。これは図 3-7 に示すように, $K_{ocv,2}$, $K_{ocv,5}$ が各サイクルを通じてほぼ一定の値を示していたからであった。従って, $K_{ocv,2}$ の式の定数を $c_{40} = 0$, $c_{41} = 0.014$ とし, $K_{ocv,5}$ の式の定数を $c_{49} = 0$, $c_{50} = -0.51$ とすることで, 各係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ と V_{diff,D_t}^λ とを良好に相関させることができる。

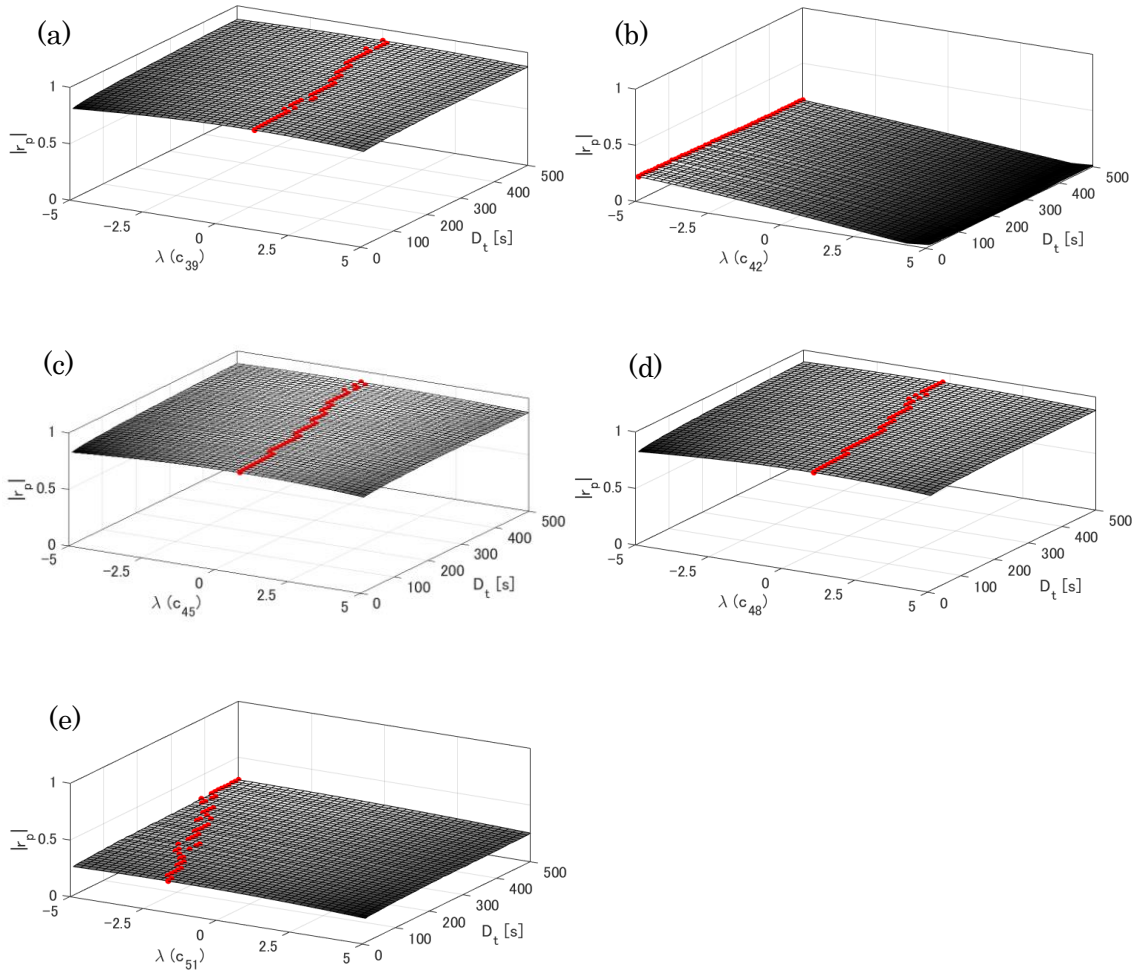


図 3-6 OCV のモデル式(55)の各 D_t , λ における相関係数絶対値 $|r_p|$. (a) $K_{ocv,1}$ (b) $K_{ocv,2}$
(c) $K_{ocv,3}$ (d) $K_{ocv,4}$ (e) $K_{ocv,5}$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す [112]

表 3.2 モデル式(55)各係数と V_{diff,D_t}^λ との相関の最良条件

	D_t	λ	$ r_p $
$K_{ocv,1}$	500	0	0.897
$K_{ocv,2}$	30	-5	0.207
$K_{ocv,3}$	500	-0.75	0.903
$K_{ocv,4}$	500	-0.25	0.910
$K_{ocv,5}$	500	-5	0.304

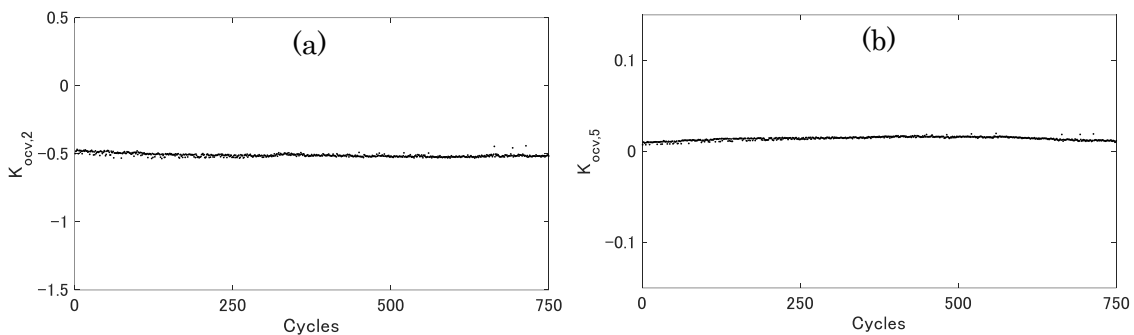


図 3-7 OCV のモデル式(55)の係数の値の推移 (a) $K_{ocv,2}$ (e) $K_{ocv,5}$ [112]

図 3-8 はモデル式(56)の係数 $K_{ocv,6} \sim K_{ocv,11}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値 $|r_p|$ を示したものであるが、係数 $K_{ocv,6} \sim K_{ocv,11}$ の全てにおいて V_{diff,D_t}^λ との相関がないことが示された。

同様に、図 3-9 はモデル式(57)の係数 $K_{ocv,12} \sim K_{ocv,17}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値 $|r_p|$ を示したものであるが、係数 $K_{ocv,12} \sim K_{ocv,17}$ の全てにおいて V_{diff,D_t}^λ との相関がない事が示された。これらの結果より、式(56)(57)は V_{diff,D_t}^λ から OCV を推定するための蓄電池劣化モデルとして適切でない事が示された。

続いて図 3-10 はモデル式(58)の係数 $K_{ocv,18} \sim K_{ocv,24}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値 $|r_p|$ を示したものである。モデル式(58)の各係数において最も良好な結果は表 3.3 に示すとおりであった。 $K_{ocv,18} \sim K_{ocv,21}$, $K_{ocv,23}$, $K_{ocv,24}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関は良好であるが、 $K_{ocv,22}$ のみ相関が良くなかった。係数 $K_{ocv,22}$ は図 3-11 の様に推移しており、サイクルと共に値が正負両方に発散しており、一定の値を示していない。このことから、 $K_{ocv,22}$ を V_{diff,D_t}^λ によって推定する事は困難と考えられた。

さらに図 3-12 はモデル式(59)の係数 $K_{ocv,25} \sim K_{ocv,36}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値 $|r_p|$ を示したものであるが、係数 $K_{ocv,25} \sim K_{ocv,36}$ の全てにおいて V_{diff,D_t}^λ との相関がなかった。以上の OCV のモデル式(55)~(59)の検討結果において、式(55)(58)の係数の多くが V_{diff,D_t}^λ と良好な相関を示した。ただし、式(55)の係数の方が良好な相関係数を示したことで、相関がなかった係数の定値性の有無を考慮し、本検討では OCV を推定する蓄電池劣化モデルとして式(55)を採用する事とした。

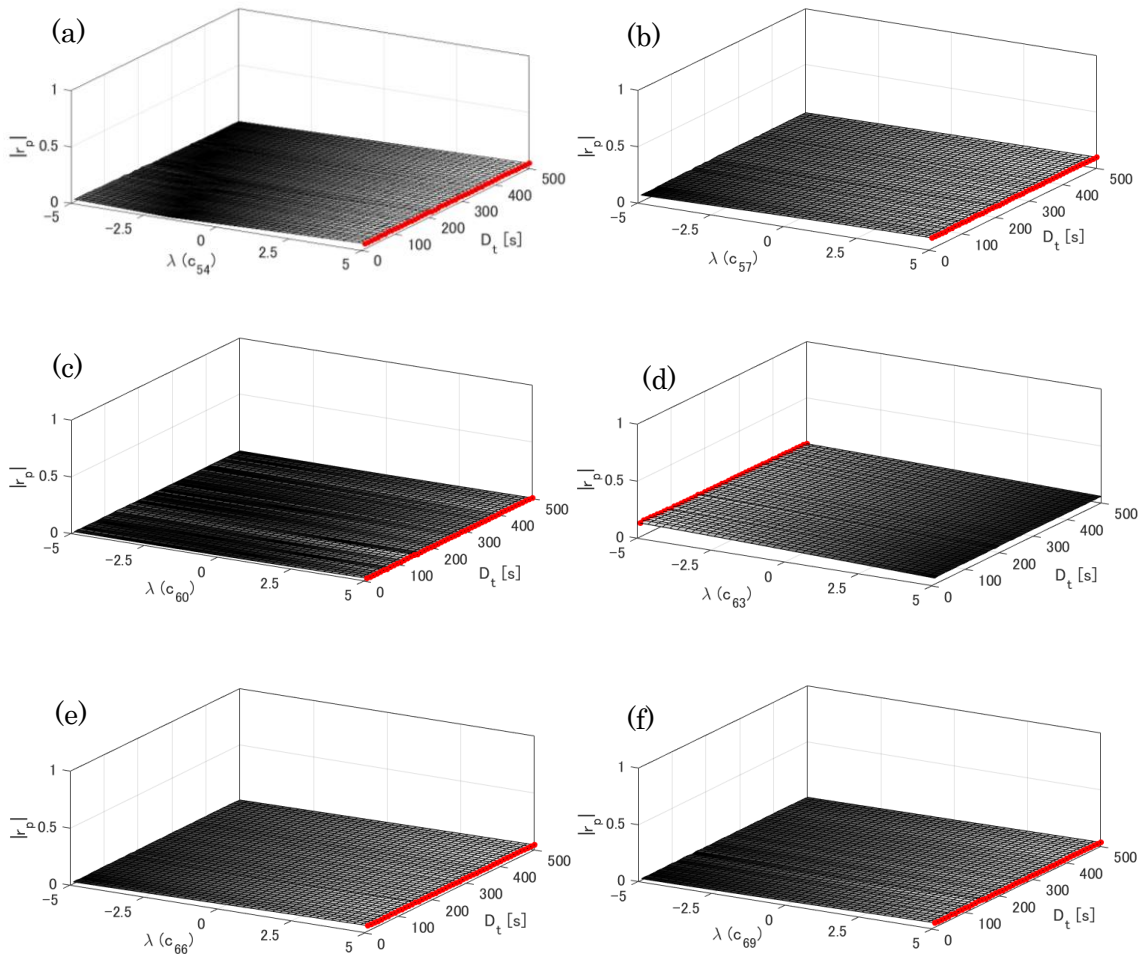


図 3-8 OCV のモデル式(56)の各 D_t , λ における相関係数絶対値 $|r_p|$. (a) $K_{ocv,6}$ (b) $K_{ocv,7}$
 (c) $K_{ocv,8}$ (d) $K_{ocv,9}$ (e) $K_{ocv,10}$ (f) $K_{ocv,11}$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す

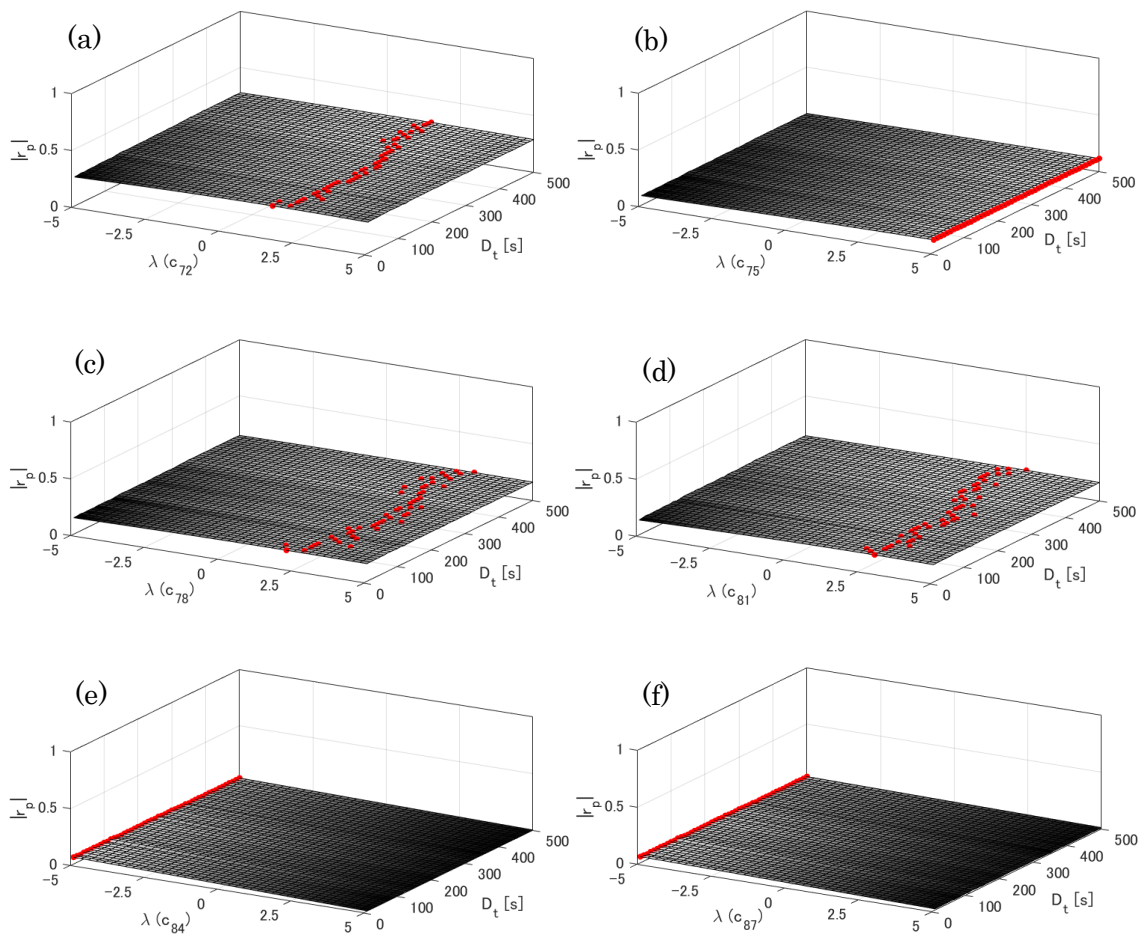


図 3-9 OCV のモデル式(57)の各 D_t , λ における相関係数絶対値 $|r_p|$. (a) $K_{ocv,12}$ (b) $K_{ocv,13}$
(c) $K_{ocv,14}$ (d) $K_{ocv,15}$ (e) $K_{ocv,16}$ (f) $K_{ocv,17}$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す

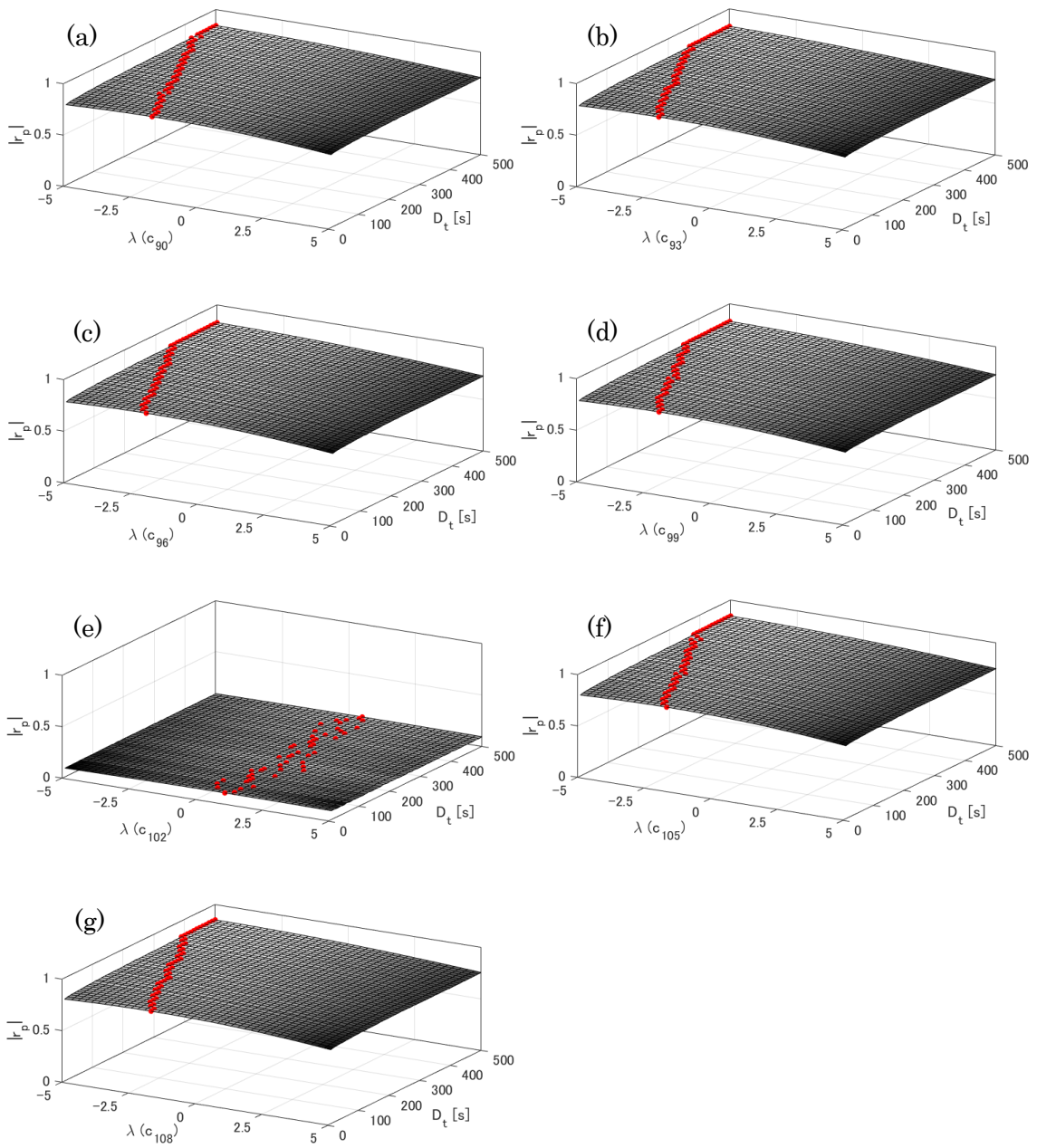


図 3-10 OCV のモデル式(58)の各 D_t , λ における相関係数絶対値 $|r_p|$. (a) $K_{Ocv,18}$ (b) $K_{Ocv,19}$
(c) $K_{Ocv,20}$ (d) $K_{Ocv,21}$ (e) $K_{Ocv,22}$ (f) $K_{Ocv,23}$ (g) $K_{Ocv,24}$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す

表 3.3 モデル式(58)各係数と V_{diff,D_t}^λ との相関の最良条件

	D_t	λ	$ r_p $
$K_{ocv,18}$	480	-5	0.840
$K_{ocv,19}$	500	-5	0.827
$K_{ocv,20}$	480	-5	0.825
$K_{ocv,21}$	500	-5	0.827
$K_{ocv,22}$	400	1	0.100
$K_{ocv,23}$	500	-5	0.842
$K_{ocv,24}$	500	-5	0.848

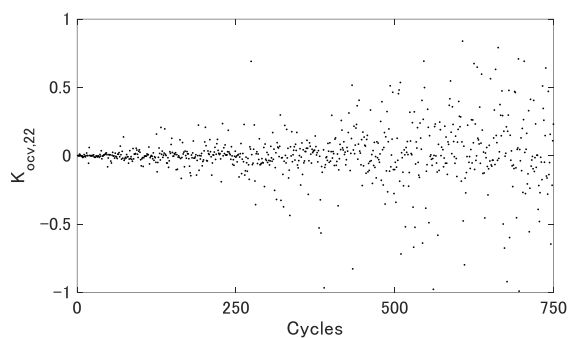
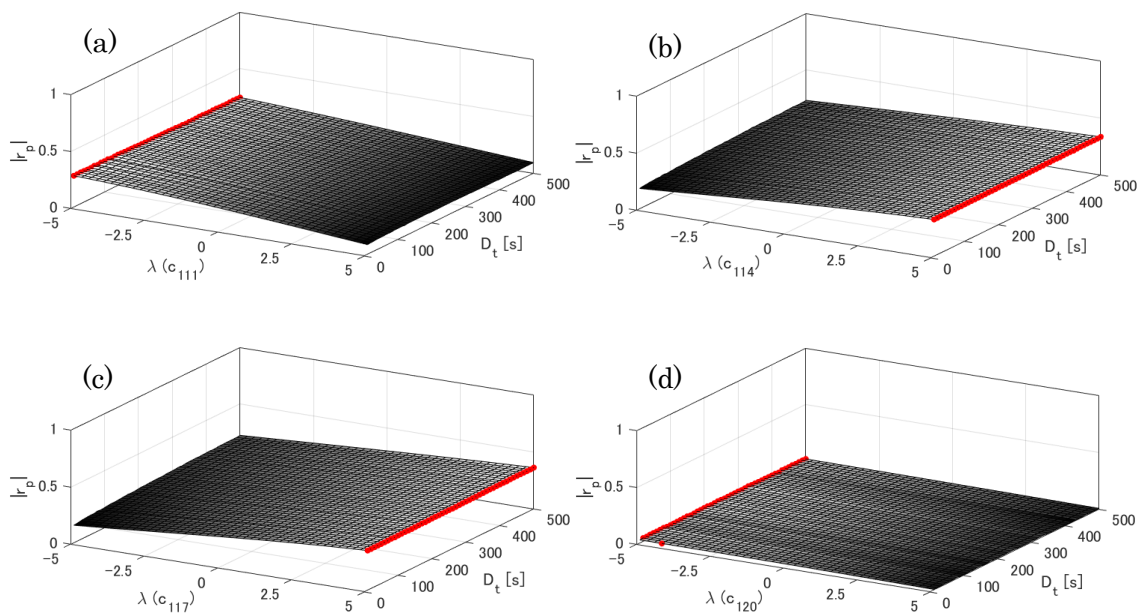


図 3-11 OCV のモデル式(58)の係数 $K_{ocv,22}$ の値の推移



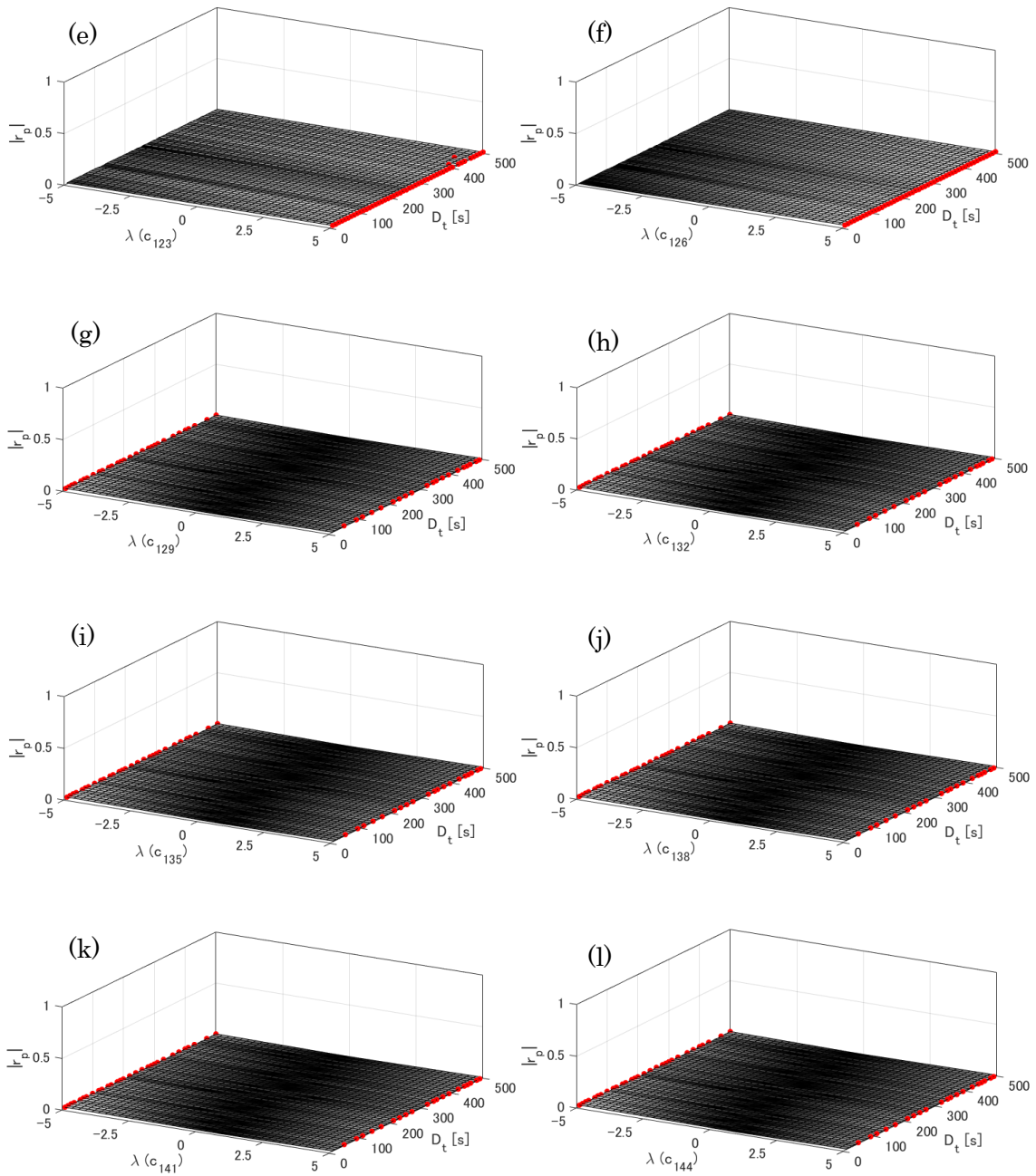
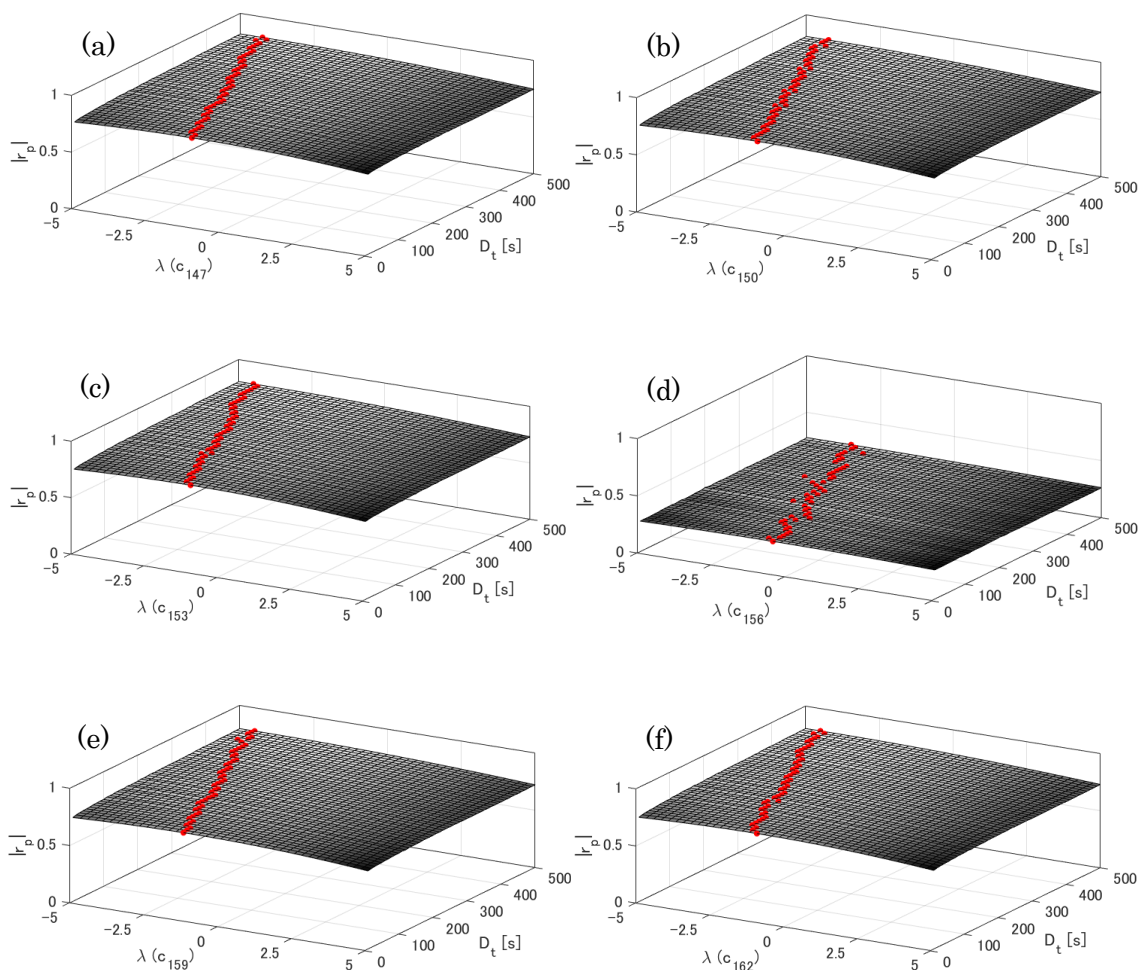


図 3-12 OCV のモデル式(59)の各 D_t , λ における相関係数絶対値 $|r_p|$. (a) $K_{Ocv,25}$ (b) $K_{Ocv,26}$
(c) $K_{Ocv,27}$ (d) $K_{Ocv,28}$ (e) $K_{Ocv,29}$ (f) $K_{Ocv,30}$ (g) $K_{Ocv,31}$ (h) $K_{Ocv,32}$ (i) $K_{Ocv,33}$ (j) $K_{Ocv,34}$
(k) $K_{Ocv,35}$ (l) $K_{Ocv,36}$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す

さらに \mathbf{R} のモデル式(60)についての検討結果を示す. 図 3-13 はモデル式(60)の係数 $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ と V_{diff,D_t}^λ との相関係数絶対値を示したものである. 各係数で最も良好な結果は表 3.4 に示すとおりである. $K_{R,1}$, $K_{R,2}$, $K_{R,3}$, $K_{R,5}$, $K_{R,6}$, $K_{R,7}$ の相関が良好であるのに対して, $K_{R,4}$ はあまり相関がない. これは図 3-14 に示すように, $K_{R,4}$ が各サイクルを通じてほぼ一定の値を示していたからであった. 従って, $K_{R,4}$ の式の定数を $c_{154} = 0$, $c_{155} = 0$ とすることで, 良好に相関させることができる. \mathbf{R} のモデル式は式(60)のみの検討であったが, 多くの係数が V_{diff,D_t}^λ と一定の相関を示し, また相関が少なかった係数の定値性も確認できたので, 本検討では \mathbf{R} の蓄電池劣化モデルとして式(60)を採用する事とした.



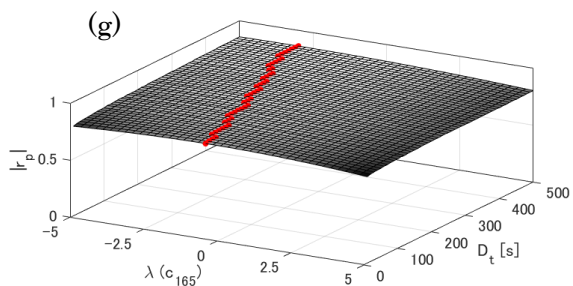


図 3-13 R のモデル式(60)の各 D_t , λ における相関係数絶対値 $|r_p|$. (a) $K_{R,1}$ (b) $K_{R,2}$ (c) $K_{R,3}$ (d) $K_{R,4}$ (e) $K_{R,5}$ (f) $K_{R,6}$ (g) $K_{R,7}$. 赤い点は各 D_t の値における最良条件を示す [112]

表 3.4 モデル式(60)各係数と V_{diff,D_t}^λ との相関の最良条件

	D_t	λ	$ r_p $
$K_{R,1}$	480	-3	0.860
$K_{R,2}$	480	-4.5	0.801
$K_{R,3}$	480	-4.5	0.794
$K_{R,4}$	410	-0.5	0.227
$K_{R,5}$	480	-4.25	0.802
$K_{R,6}$	480	-4.25	0.809
$K_{R,7}$	480	-4.25	0.816

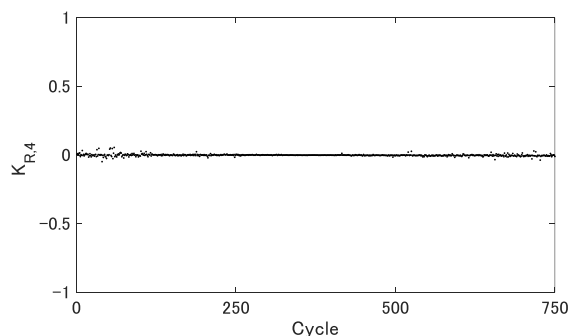


図 3-14 R のモデル式(60)の係数 $K_{R,4}$ の値の推移 [112]

FCC, OCV, R の各蓄電池劣化モデル(54)(55)(60)の係数が V_{diff,D_t} より推定可能であることが解明されたので, この性質を利用して式(41)(42)で充放電エネルギー E_c , E_d の推定を行った. ここでは $10 \leq D_t \leq 500$ (ただし D_t の分解能は10 [s]とした)の範囲で推定を行った. また, 式(54)(61)(62)の係数 C_n (ただし $n = 34, 35, \dots, 51, 145, 146, \dots, 165$)を, 図 3-5, 図 3-6,

図 3-13 に示した各 D_t における最適条件(図の赤い点)として検出された値にした。ただし、 V_{diff,D_t}^λ との相関が弱い係数 $K_{ocv,2}$, $K_{ocv,5}$, $K_{R,4}$ については、 $c_{40} = 0$, $c_{41} = 0.014$, $c_{49} = 0$, $c_{50} = -0.51$, $c_{154} = 0$, $c_{155} = 0$ とし各係数を定値とした。まず、各サイクルの E_c , E_d の推定値と実測値の平均絶対誤差を図 3-15 に示す。 $D_t > 280$ となったところから平均絶対誤差が大きくなりやすい性質が認められた。また最も精度よく推定ができたのは $D_t = 150$ の時であり、このときの平均絶対誤差率は充電が 0.19%、放電が 0.25%であった。 $D_t = 150$ の時の各係数 C_n を表 3.5 に、また各サイクルの E_c , $-E_d$ 推定および推定誤差の結果を図 3-16 に示す。本章で提案した手法と式(4)によって η_{cd} を算出できる。なお図 3-15 に示した通り、 $10 \leq D_t \leq 280$ の範囲では E_c , E_d の推定ともに平均絶対誤差が $D_t = 150$ の時と同程度の水準で安定しており、より短い放電時間でも良好な推定精度が得られる事が示された。

式(54)では幅広い $c_{36}(\lambda)$ の値に対して良好な相関が得られることが図 3-5 で示されている。従って $c_{36} = 1$ あるいは2など、指数の値を比較的単純にすることによって、容易に C_{fc} から V_{diff,D_t} を逆算する事ができ、そこから式(55)(60)(61)(62)で $O_{cv}(S_{oc})$ および $R_{int}(S_{oc})$ を推定できる。代表的な C_{fc} の減少傾向としてはルート則[108]が知られており、これを当てはめることによって、将来の E_c , E_d の推移を推定することも可能である。

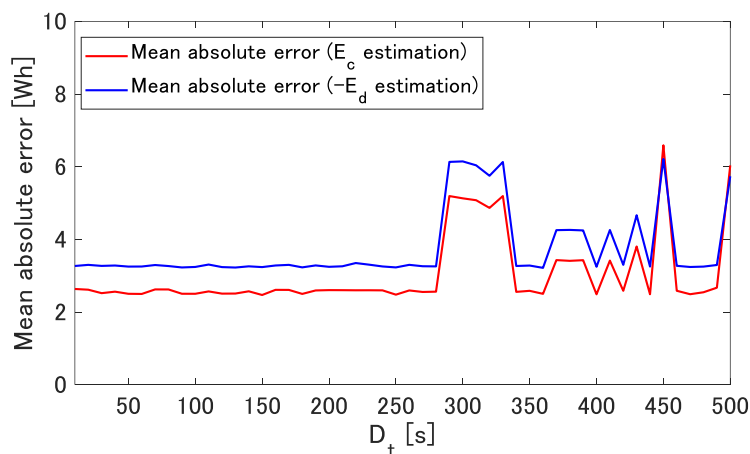


図 3-15 V_{diff,D_t} から推定した E_c , $-E_d$ と実測値の平均絶対誤差

表 3.5 $D_t = 150$ の時にフィッティングされた式(54)(61)(62)の各定数

C_{fc}	c_{34}	c_{35}	c_{36}
	-1.136	47.444	2.75
$K_{ocv,1}$	c_{37}	c_{38}	c_{39}
	1.136	26.153	1
$K_{ocv,2}$	c_{40}	c_{41}	c_{42}
	0	0.014	—
$K_{ocv,3}$	c_{43}	c_{44}	c_{45}
	4.592	-8.238	0.5
$K_{ocv,4}$	c_{46}	c_{47}	c_{48}
	0.975	-1.206	0.75
$K_{ocv,5}$	c_{49}	c_{50}	c_{51}
	0	-0.510	—
$K_{R,1}$	c_{145}	c_{146}	c_{147}
	-0.070	0.082	-1.25
$K_{R,2}$	c_{148}	c_{149}	c_{150}
	0.362	-0.364	-2.25
$K_{R,3}$	c_{151}	c_{152}	c_{153}
	-0.970	0.974	-2.25
$K_{R,4}$	c_{154}	c_{155}	c_{156}
	0	0	—
$K_{R,5}$	c_{157}	c_{158}	c_{159}
	3.728	-3.643	-2.25
$K_{R,6}$	c_{160}	c_{161}	c_{162}
	-5.535	5.456	-2
$K_{R,7}$	c_{163}	c_{164}	c_{165}
	2.345	-2.290	-2

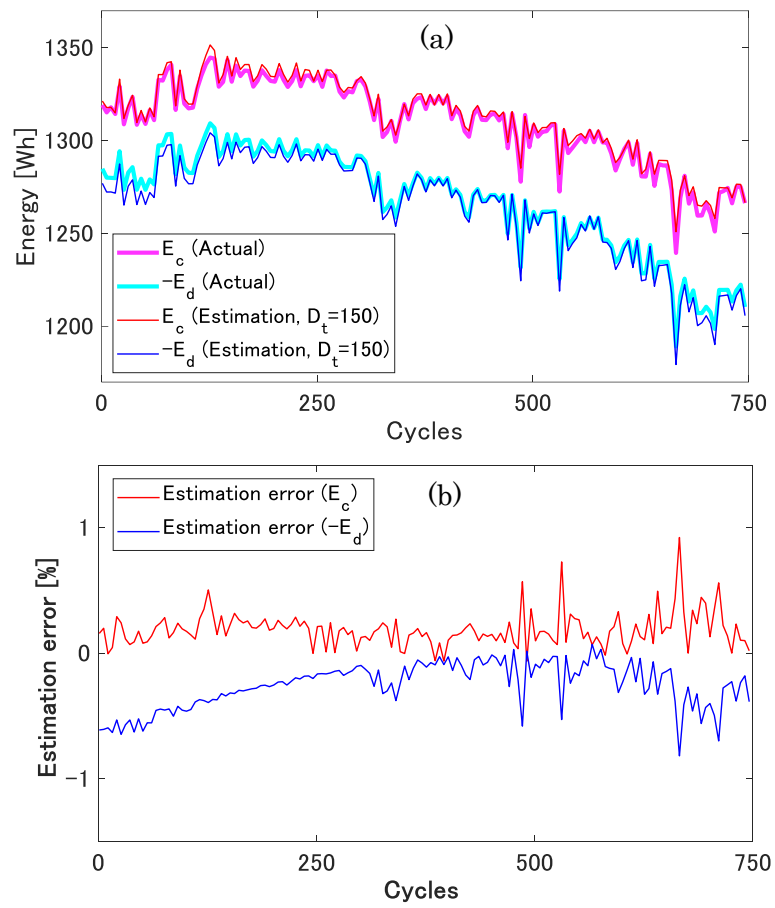


図 3-16 $D_t = 150$ の時の (a)推定 E_c , $-E_d$ と実測値の比較 (b)推定誤差

3.3 運用経済性改善シミュレーション

リチウムイオン蓄電池を DER として有機的・知的に連携したバッテリーアグリゲーション[15]においては、各リチウムイオン蓄電池は電力需要家に所有される事を想定している。このリチウムイオン蓄電池群を再生可能エネルギーの最適な導入と活用に向けて運用する検討事例が報告されている[119][120][121][122]。これらの取組においてリチウムイオン蓄電池の所有者である一般家庭、企業、あるいはマイクログリッド管理者などはプロシューマーと呼ばれている。プロシューマーは電力ネットワークから電気を購入するだけでなく、所有するリチウムイオン蓄電池の効果的な運用によって電力ネットワークの安定化に寄与するとともにその対価を受け取る。つまり、プロシューマーがリチウムイオン蓄電池を所有する主要な動機の一つはその収益性である。従って購入時やメンテナンスのコストだけでなく、運用中の充放電エネルギー損失によるコストが適切に考慮される必要がある。過去に、マイクログリッド全体の運用経済性最大化を追求すると、蓄電池の充放電エネルギー効率低下に伴って蓄電池の稼働率が低下する事例が報告されている[123]。このことは、劣化によって充放電エネルギー効率が低下したりリチウムイオン蓄電池をバッテリーアグリゲーションの中で敢えて充放電させない、いわゆる選択的充放電の必要性を示唆する。そしてこの選択基準はリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断で提供できる。

第2章でリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断によるバッテリーアグリゲーションの運用経済性改善効果を解明したが、第2章の効率劣化診断手法には充放電出力一定でなければならない制約条件があり、結果として限定的な経済性分析にとどまっていた。一例を挙げると、図 1-15 に示したバッテリーアグリゲーション中の蓄電池は V2G 充電器で電力ネットワークに接続された電気自動車である場合が考えられるが、V2G 充電器の出入力の大きさは装置によって異なる。この V2G 充電器の出入力の大きさと蓄電池の運用経済性の関係あるいは影響について、第2章では未検討であった。一方、本章で示した蓄電池劣化モデルは、リチウムイオン蓄電池への出入力を一般化した効率劣化診断を可能とし、第2章の課題を克服した。さらに、式(54)によって C_{fc} から $V_{diff,Dt}$ を逆算できるため、劣化による C_{fc} の推移を予測できれば式(41)(42)(55)(60)(61)(62)によって E_c および E_d を推定できる。また、第2章のバッテリーアグリゲーション運用経済性改善分析は太陽光発電余剰電力をリチウムイオン蓄電池の充電で吸収するものであった。しかしシミュレーションにおける太陽光発電余剰電力の出現パターンや、リチウムイオン蓄電池群の劣化状態の分布が固定的あるいは画一的であり、図 1-15 のようなバッテリーアグリゲーションで想定される動的な条件が含まれていなかった。

以上を踏まえ、ここでは太陽光発電余剰電力の出現パターンとして九州エリアにおける2018年10月8日～同年11月11日の再生可能エネルギー出力制御量を採用した。また、リチウムイオン蓄電池運用時の容量劣化を既報の劣化モデルで定義し、そこから算出される残存容量と本章の蓄電池劣化モデルを用いて充放電エネルギー効率を詳細に算出した。また算出された充放電エネルギー効率と卸電力の動的価格を用いて、効率劣化診断に基づ

いた太陽光発電余剰電力の選択的充電の効果，すなわちバッテリーアグリゲーション全体の充放電エネルギー効率と収益性の向上率について，MATLAB を用いてシミュレーションした[113]．

ここでの検討に用いたバッテリーアグリゲーションの環境は，プロシューマーが保有する 200 台の電気自動車に V2G 充電器で電力ネットワークに接続されたものとした．この V2G 充電器は，電気自動車に充電ができるだけでなく，電気自動車に蓄えられた電力を電力ネットワーク側へと還流させることができる，系統連系された双方向型のものとした．また，200 台の電気自動車は必要な時に確実に V2G 充電器に接続することができる，つまり V2G 充電器が別の電気自動車と接続しており順番待ちをするような状況は無い，と仮定した．

本章検討が対象とした 2018 年 10 月 8 日～同年 11 月 11 日の期間において，九州エリアの太陽光発電余剰電力，すなわち再生可能エネルギー出力制御は図 3-17 のような出現パターンとなっていた．図 3-17 に示す通り，検討対象期間の九州エリアの再生可能エネルギー出力制御は全て休日に実施されていた．一方，検討対象期間の九州エリアのエリア需要は図 3-18 に示すとおりであり，平日と比較して休日の昼間の電力需要は総じて少なかった．この昼間の電力需要の差が再生可能エネルギー出力制御の有無に帰着したものと容易に推測される．これらの状況より，バッテリーアグリゲーションの中の電気自動車が休日の昼間に V2G 充電器に接続され，太陽光発電余剰電力を充電可能である環境が必要になる．つまり電気自動車の用途として，休日の昼間にほとんど走行しないパターンを持つものが望ましいと考えられる．

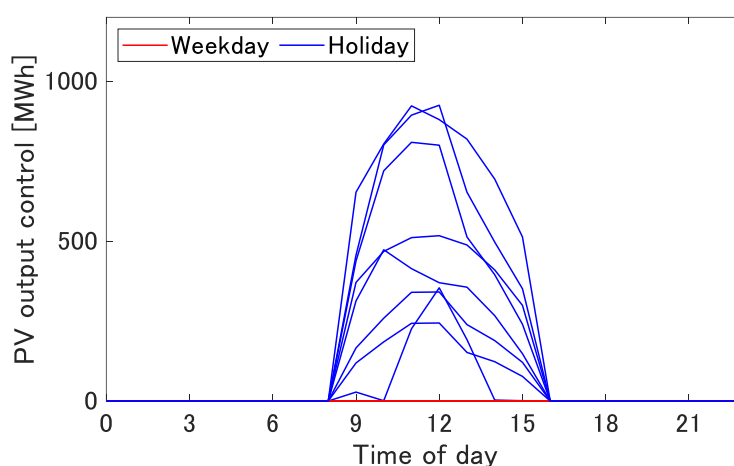


図 3-17 九州エリアの 2018 年 10 月 8 日～同年 11 月 11 日における平日と休日の太陽光発電出力制御量の状況 [113]

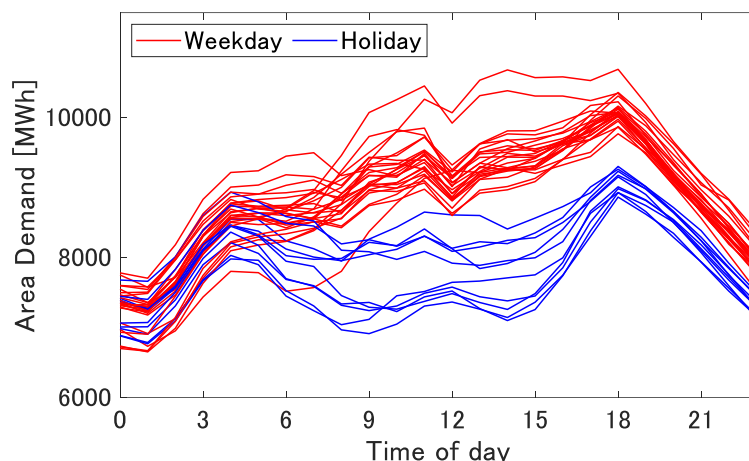


図 3-18 九州エリアの 2018 年 10 月 8 日～同年 11 月 11 日における平日と休日のエリア電力需要の状況 [113]

電気自動車の車両走行データ分析[124]によると、仕事以外の用途で昼間に走行する車の量は平日・休日を問わず多い一方、仕事で走行する車は休日の昼間には少ない。ここから、仕事に特化した自動車すなわち業務用車両は休日昼間に駐車されている事が示唆され、本検討での太陽光発電余剰電力を充電するための受け入れ先として適していると考えられた。実際に休日の太陽光発電余剰電力対策を含めた業務用電気自動車の運用方法の一例を設計すると、平日の月曜日から金曜日の深夜に充電して昼間は業務目的で主に走行し、金曜日および土曜日の夕方には翌日昼の太陽光発電余剰電力を受け入れるために放電しておく、ということになる。ここで本章検討期間の九州エリア卸電力価格を図 3-19 に示す。図 3-19 では、平日休日問わず 17 時～20 時頃のスポット価格が高水準であったことが示されている。これは太陽光発電電力が日没に近づいて減少していくとともに、外出者が帰宅し夕食を準備するなど家庭の活動が活発化することによって電力需要が増加して、需給バランスが需要側にシフトした結果と推測される。つまり 17 時～20 時頃は電力ネットワークが電力供給を求めて卸電力価格が高水準になる時間帯であるから、太陽光発電余剰電力を充電し蓄えた蓄電池を放電させる最適な時間帯と考えることができる。そこで、休日の昼間に電気自動車へ充電し蓄えた太陽光発電余剰電力は、その日の夕方 17 時以降に V2G 充電器を介し電力ネットワークに向けて放電することとした。従って土曜日の夕方以降の放電は、翌日の太陽光発電余剰電力受け入れのための準備と、当日に蓄えた太陽光発電余剰電力の売電収益化の両方を兼ねることになる。以上を踏まえた業務用電気自動車の 1 週間の運用パターンを図 3-20 に示す。なおここでは、リチウムイオン蓄電池容量 62kWh、航続距離 458km(WLTC モード)の日産リーフ e+を想定し、走行時の平均時速約 25km と仮定して、走行時平均消費電力を 3.5kW とした。当然この値は走行時の速度、勾配、エアコ

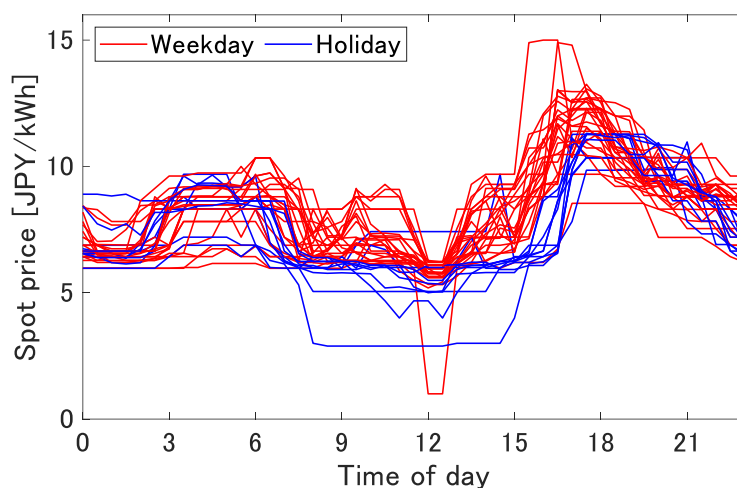


図 3-19 九州エリアの 2018 年 10 月 8 日～同年 11 月 11 日における平日と休日の卸電力価格（スポット価格）状況 [110]

Day of the week \ Time	AM						PM											
	0	2	4	6	8	10	0	2	4	6	8	10						
Monday	Charge for preparing daytime drive						Business trips (3.5kW discharge)											
Tuesday																		
Wednesday																		
Thursday																		
Friday																		
Saturday							Discharge for standby / sell											
Sunday	Charge surplus energy (If required)																	

図 3-20 太陽光発電余剰電力に向けた業務用電気自動車の 1 週間の走行・運用パターン [113]

ン使用状況，天候など様々な条件によって変化する性質のものであるが，本章検討ではシミュレーションを単純化するため，一定の値として扱った．また 62kWh のリチウムイオン蓄電池は，本論文末尾の共通条件(2)で使用したモジュールを 42 個連結したものと扱った．

電気自動車を接続し充放電する V2G 充電器の出入力については，CHAdEMO 認証された急速充電器の特性[125]を参考とし，20kW，25kW，30kW，44kW，50kW をシミュレーション条件として採用した．また，電気自動車の充放電に係る蓄電池以外の部分の電力効率，充電および放電それぞれにおいて 95%とした．

シミュレーションで算出する値は，効率劣化診断によるバッテリーアグリゲーション全体の充放電エネルギー効率と収益の改善率である．本検討のシミュレーションにおいて，充放電エネルギー効率とは充電した太陽光発電余剰電力の総量に対する放電した同電力の

比率である。また、収益とは充電した太陽光発電余剰電力を電力ネットワークに放電した時の、電力量と卸電力スポット価格との積の総和である。本検討ではこれらの値を、電気自動車をランダムに選択して太陽光発電余剰電力を充電した場合と比較し、どれだけの割合で向上したかを算出した。その際、できる限り初期設定（特にリチウムイオン蓄電池の劣化状態の分布）によるバイアスの影響を低減することを目的とし、各条件では想定する35日間(2018年10月8日～同年11月11日を想定)を10回繰り返してシミュレーションし、平均化した結果を求めた。また、アグリゲートされた蓄電池容量と余剰電力量の比率の影響を分析するため、図3-17の余剰電力出現トレンドを維持したままピーク値が $10^2 \sim 10^4 \text{ kWh/h}$ の範囲となるよう均等に除した時系列値をシミュレーションに用いた。

本検討における業務用電気自動車に搭載されたリチウムイオン蓄電池は、業務中の走行時およびV2G充電器に接続し充放電しているときのいずれにおいても、経時劣化が進むものとした。シミュレーションにおいてこの劣化はFCC低下として進むものとし、既報のFCC劣化モデル[126]

$$K_d(S_{oc}) = A_i \left\{ \exp\left(\frac{0.23S_{oc}}{R}\right) \times \exp\left(\frac{138.07}{R}\right) \times \exp\left(\frac{-71560}{RT}\right) \right\} \quad (63)$$

が成立するものとした。ここで R は気体定数、 T は絶対温度、 K_d は時間当たりFCC減少率 [$10^{-5} \text{ days}^{-1}$]、 A_i はモデル式(63)のFCC減少率調整項である。本章検討ではリチウムイオン蓄電池の温度は 25°C 一定であるものとし、 $S_{oc} = 0.5$ を維持した場合に10年で K_d の累積が0.2となるよう、 $A_i = 12.935$ として調整した。また、 K_d の累積が0.2、つまり C_{fc} が初期値の80%となった時をリチウムイオン蓄電池のEOLと定義した。シミュレーションにおいてEOLに達したリチウムイオン蓄電池は除去され、BOLのリチウムイオン蓄電池が除去された数と同数補充されることとした。

式(63)の累積計算によって得られる各リチウムイオン蓄電池の C_{fc} と式(54)によって差電圧指標 $V_{diff,Dt}$ を逆算的に求め、この $V_{diff,Dt}$ から式(55)(60)(61)(62)で $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ を求めた。シミュレーションにおいてリチウムイオン蓄電池の充放電を実施する場合には、蓄電池以外の電力効率を加味したうえで、この C_{fc} 、 $V_{oc}(S_{oc})$ 、 $R_{int}(S_{oc})$ から式(41)(42)によって E_c および E_d を算出した。本章検討では、式(54)(61)(62)に必要な各係数に関し、本論文末尾の共通条件(2)の充放電サイクル試験から実際にフィッティングされた値を採用した。また、リチウムイオン蓄電池の充放電範囲は $0.01 \leq S_{oc} \leq 0.99$ とした。これは、 $S_{oc} = 0$ あるいは $S_{oc} = 1$ における式(55)の発散を防ぐためである。

シミュレーション開始時には、200台の電気自動車のリチウムイオン蓄電池がBOLからEOLまで万遍なく均等に分布するよう設定した。ここでは式(54)によりBOL時に $V_{diff,Dt} = 1.0065$ 、EOL時に $V_{diff,Dt} = 1.9216$ となるため、 $1.0065 \leq V_{diff,Dt} \leq 1.9216$ の範囲で200個の値をランダム抽出することによって各電気自動車の劣化状態の分布を作り出した。 $V_{diff,Dt}$ の値は式(54)(63)に従ってシミュレーションの時間経過とともに徐々に増加していき、 $V_{diff,Dt} = 1.9216$ に達した電気自動車は除去し、新たに $V_{diff,Dt} = 1.0065$ の電気自動

車を投入する。太陽光発電余剰電力を充電する際には、電気自動車の充電による S_{oc} 運用幅における η_{cd} を、式(4)(41)(42)で算出して比較し、 η_{cd} が高いものから順に充電していく。このとき運用する S_{oc} の範囲が異なると、 $R_{int}(S_{oc})$ の特性によって同じ電気自動車でも η_{cd} の値が変わる。従って単純な $V_{diff,Dt}$ の比較は充放電エネルギー効率の最大化につながらないので、 S_{oc} の運用範囲を考慮した η_{cd} を算出して各リチウムイオン蓄電池を比較選択した。

本検討で実施したバッテリーアグリゲーションにおける効率劣化診断のシミュレーションの流れは図 3-21 に示す通りである。はじめに、入力する基本特性を設定する。バッテリーアグリゲーション特性にはどのような蓄電池がどのくらいアグリゲートされるか、およびその運用方法や効率劣化診断の有無を規定する。本検討では全て同じ種類の 200 台の業務用電気自動車が双方向型の V2G 充電器で接続されていることを情報として含む。蓄電池劣化特性にはバッテリーアグリゲーションに含まれるリチウムイオン蓄電池の劣化速度やトレンドの情報が規定される。本検討では式(63)が該当する。入出力特性にはアグリゲートされた蓄電池が電力ネットワークとの間で充放電する際の電力値が規定される。本検討では V2G 充電器の出力および電気自動車として走行時の放電電力が該当する。次にテーブルデータを設定する。太陽光発電余剰電力データには九州電力エリア需給データ [8]を導入した。ただし前述したように、実際の余剰電力出現トレンドを維持したままピーク値が $10^2 \sim 10^4 kWh/h$ の範囲となるよう均等に除した時系列値として導入した。卸電力価格には JEPX の九州エリアスポット価格 [110]を導入した。さらに変動パラメータとして、各リチウムイオン蓄電池の S_{oc} と $V_{diff,Dt}$ を設定する。初期条件として $S_{oc} = 0.5$ とし、

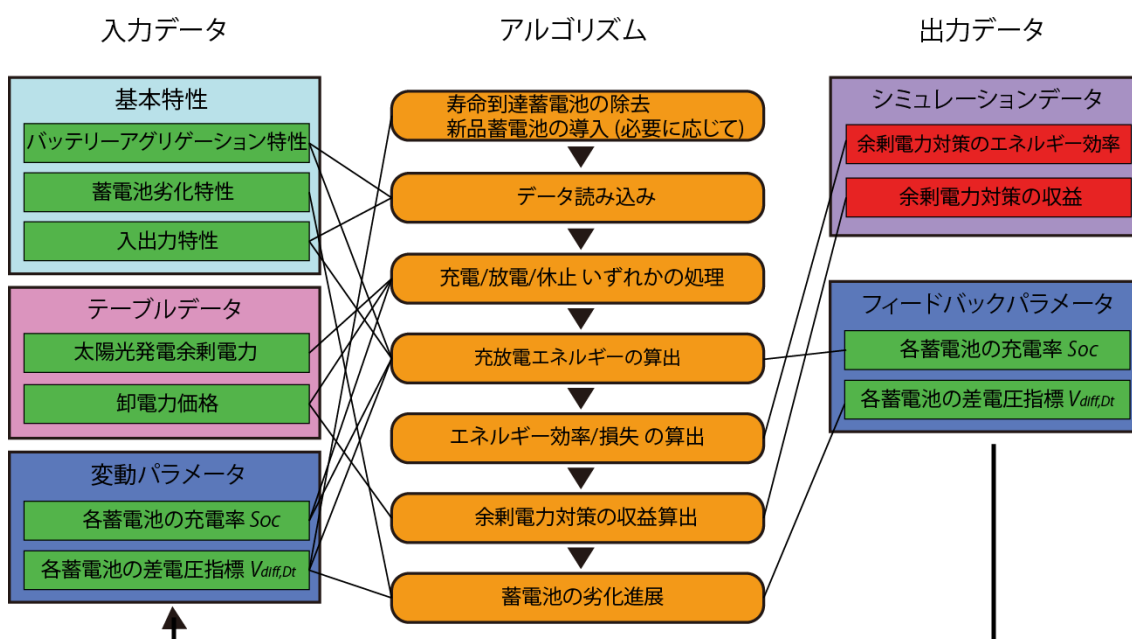


図 3-21 バッテリーアグリゲーションにおける効率劣化診断のシミュレーションの流れ [113]

$V_{diff,Dt}$ はすでに述べたように $1.0065 \leq V_{diff,Dt} \leq 1.9216$ の範囲でランダムに設定した。

シミュレーションはまず、EOLに到達した蓄電池の確認から行う。200個のリチウムイオン蓄電池の $V_{diff,Dt}$ の値を参照し、 $V_{diff,Dt} > 1.9216$ のものを確認したらこれを除去し、代わりに $V_{diff,Dt} = 1.0065$ のBOLリチウムイオン蓄電池をバッテリーアグリゲーション特性および蓄電池劣化特性として管理するデータセットの中に導入する。次にバッテリーアグリゲーション特性と入出力特性を読み込み、曜日時刻に応じた運用を決定する。この運用に応じて充電、放電、休止いずれかの処理を行う。充電及び放電は、V2G充電器に接続している時間帯であれば、充電器の出力値でリチウムイオン蓄電池以外の効率を加味して実施する。電気自動車走行時であれば、既定の電力で放電する。太陽光発電余剰電力のテーブルデータを参照し余剰電力が発生している時刻であれば、それに合わせて各リチウムイオン蓄電池に充電を行う。このとき効率劣化診断を実施している場合は、その時点で想定される η_{cd} が高いリチウムイオン蓄電池から順に充電する。この η_{cd} の想定値は、 $V_{diff,Dt}$ の値と S_{oc} の運用範囲を考慮して式(41)(42)(55)(60)(61)(62)より求める。他方、効率劣化診断を実施していない場合は $V_{diff,Dt}$ の値に関わらずランダムにリチウムイオン蓄電池を選択して充電を行う。蓄えた太陽光発電余剰電力を電力ネットワークに放電する時間帯である場合は、その放電電力量を積算するとともに、その時刻の卸電力料金と放電電力量を乗じて売電価格を算出する。放電電力量積算値は太陽光発電余剰電力積算値とともに余剰電力対策のエネルギー効率として出力データに格納する。売電価格も積算して、余剰電力対策の収益として出力データに格納する。充電あるいは放電の結果として各リチウムイオン蓄電池の S_{oc} は変化するので、変化後の S_{oc} の値をフィードバックパラメータとして格納する。さらに、この S_{oc} と式(63)で K_d を算出して各リチウムイオン蓄電池の C_{fc} を更新し、式(54)で $V_{diff,Dt}$ を算出してフィードバックパラメータとして格納する。これらフィードバックパラメータで変動パラメータを更新し、次の時間帯におけるアルゴリズムを再度実施する。本検討のシミュレーションではこの一連のプロセスを、MATLABを用いて繰り返し実施した。

このシミュレーション結果を図 3-22 に示す。図 3-22 の(a)および(b)はいずれも V2G 充電器の出力と、太陽光発電余剰電力のピーク値を軸に持っている。太陽光発電余剰電力のピーク値とは、図 3-17 の余剰電力の時間帯別最大値に一定の値を乗じたものである。この一定の値とは、アグリゲートされた蓄電池容量と余剰電力量の比率の影響を分析するためにテーブルデータ全体にあらかじめ乗じた値のことである。本検討条件においては、効率劣化診断によって V2G 充電器の出力が大きく、太陽光発電余剰電力のピーク値が小さいときに、大きな充放電エネルギー効率改善効果(最大で 3.4%)が得られたことが図 3-22(a)で示された。これと同様の傾向を図 3-22(b)の収益改善率も示しており、最大で 8.0%の収益改善率が認められた。

V2G 充電器の出力および太陽光発電余剰電力のピーク値が充放電エネルギー効率および収益の改善に影響した理由について考察する。まず、V2G 充電器の出力が増加した場合、

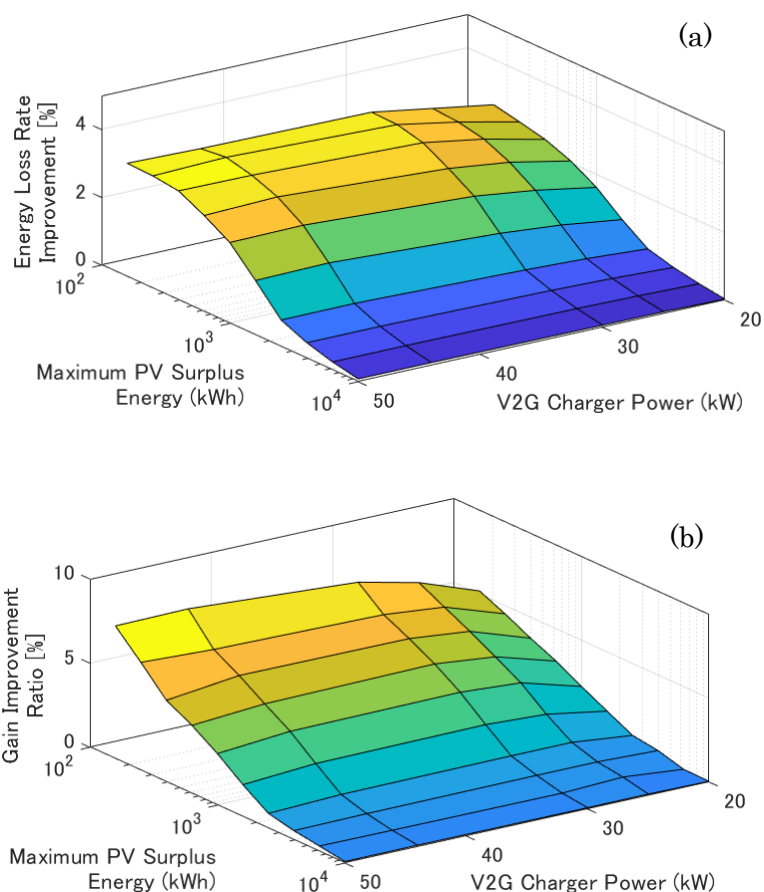


図 3-22 バッテリーアグリゲーションにおける効率劣化診断のシミュレーションの結果[113]
 (a) 充放電エネルギー効率の改善率 (b) 収益の改善率

電気自動車のリチウムイオン蓄電池はより大きな電力で充放電されることになる。一方、電気自動車に搭載されるリチウムイオン蓄電池の直列方向の総電圧は DC/DC コンバータ等の特性に合わせる必要があるため、一般に電池容量に関わらず規定されている。本章シミュレーションにおいても同様の想定の下に入出力される電力値をモジュール毎に単純配分しているので、電力の増加はそのまま電流の増加を意味する。式(35)(36)では発熱損失が電流の 2 乗オーダーで生じ、電流の増加が L_{cd} の増加につながることを示されている。従って V2G 充電器の出力が増加すると、効率劣化診断による高エネルギー効率のリチウムイオン蓄電池の選択効果が増すと考えられる。次に太陽光発電余剰電力のピーク値が小さい時は、バッテリーアグリゲーションの蓄電池総容量に対する太陽光発電余剰電力量が少なく、一部のリチウムイオン蓄電池に限定して余剰電力が充電される。このような状況ではリチウムイオン蓄電池の選択の余地がある。一方、太陽光発電余剰電力量が多くなると徐々に多数のリチウムイオン蓄電池が稼働するようになる。極端な場合では全てのリチウムイオン蓄電池が稼働することになり、このような場合は効率劣化診断によって高エネルギー効率のリチウムイオン蓄電池を選択的に運用することが不可能になる。従って、蓄電池総

容量に対する余剰電力量が小さく蓄電池の選択の余地が大きい場合に、効率劣化診断による高エネルギー効率のリチウムイオン蓄電池の選択効果が増すと考えられる。

3.4 まとめ

本章では実際のバッテリーアグリゲーションの DER 運用を踏まえ、多様な充放電出入力に対応可能な蓄電池劣化モデルを提案した。モデルに含まれる FCC, OCV, R をそれぞれ要素ごとにモデル式とし、そこに含まれる係数が差電圧指標から推定可能である事を解明した。この差電圧指標取得の際の放電時間は、短時間(10 s 程度)でも精度よく推定できることを示した。この蓄電池劣化モデルによって実用的な効率劣化診断が可能になった。本手法は、リチウムイオン蓄電池の充放電曲線情報を差電圧指標と 13 個のモデル式係数とによりデータ圧縮するものと解釈できる。これは図 1-15 に示したバッテリーアグリゲーションのクラウド側マネジメントシステムにおいて、データ転送や各リチウムイオン蓄電池の管理における利便性向上の可能性を示唆する。またこの蓄電池劣化モデルでは、既知の FCC の減少トレンドを利用してモデル式から逆算的に差電圧指標を算出することができ、そこから将来の充放電エネルギー推移を予測できると考えられる。

さらに本章の蓄電池劣化モデルを利用して、太陽光発電余剰電力の発生状況、卸電力料金、リチウムイオン蓄電池の劣化に関して動的かつ具体的な条件を設定したシミュレーションを実施した。このシミュレーションによって、効率劣化診断のバッテリーアグリゲーション経済性向上効果を定量的に示した。従って、1.3 節で提起した今後のバッテリーアグリゲーションに想定される運用経済性最適化の課題は、リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断により解決可能と考えられる。

第 4 章 現実的な蓄電池劣化モデル生成法

4.1 はじめに

第 3 章の蓄電池劣化モデルは本論文末尾の共通条件(2)に基づき、750 サイクルの定電力充放電サイクル試験の時系列データを教師データとして、モデル式(54)(61)(62)の差電圧指標のべき乗 V_{diff,D_t}^λ との相関を利用して生成した。一方、本論文末尾の共通条件(2)での定電力サイクル充放電試験は、充電と放電にそれぞれ約 1.5 h とインターバルで 1.5 h の時間がかかる条件であるから、1 サイクルあたり 6 h 程度となる。従って 750 サイクルで半年程度の時間がかかり、またその期間の充放電サイクル試験装置および恒温槽を占有するコストが発生する。

定電力充放電サイクル試験の教師データ量を減らしてこの蓄電池劣化モデルを生成し、式(54)(61)(62)のフィッティングを実施した場合、全 750 サイクルをテストデータとした各パラメータ(FCC, OCV, R)の推定精度(平均絶対誤差率)は図 4-1 のようになる。ここでは $D_t = 10$ とした差電圧指標 $V_{diff,10}$ を用いている。図 4-1 より、FCC および OCV では教師データ量 400 サイクル付近を境目に顕著な推定精度の低下が認められ、R では教師データ量の減少に伴って推定精度の漸次的な低下が見られた。従って、第 3 章の蓄電池劣化モデル生成法での単純な教師データ量削減は、各パラメータの推定精度低下につながり、結果として充放電エネルギー E_c , E_d の推定精度低下に帰着する。

この、教師データ取得コストと推定精度のトレードオフを解決するために、新たな蓄電池劣化モデル生成法を検討した。ここでは対象のドメインおよびタスクが同一であることを前提として、学習用データセットに含まれない未知のデータセットに対する汎化能力を持つ手法の一つであるニューラルネットワーク(NN:Neural Network)を用いて検討した。NN の検討について、4.2 節で説明する。

他方、図 1-15 のようなバッテリーアグリゲーションへは、種類・劣化状態の異なる様々なリチウムイオン蓄電池の導入が想定される。これらリチウムイオン蓄電池のすべての種類に対して、蓄電池劣化モデルを生成するために事前の充放電サイクル試験を実施しておくことは現実的ではない。また、図 1-14 のようなリユースバッテリーの導入によって、状態が不明なリチウムイオン蓄電池がバッテリーアグリゲーションに含まれてくる事もあり得る。従って、蓄電池劣化モデルの生成に必要な教師データ自体を準備できない可能性があり、教師データ無しの手法を検討する必要がある。

効率劣化診断で推定しなければならないパラメータは式(41)(42)に示した通り、

- (1) FCC の値 C_{fc}
- (2) SOC に対する OCV の関数 $V_{oc}(S_{oc})$
- (3) SOC に対する R の関数 $R_{int}(S_{oc})$

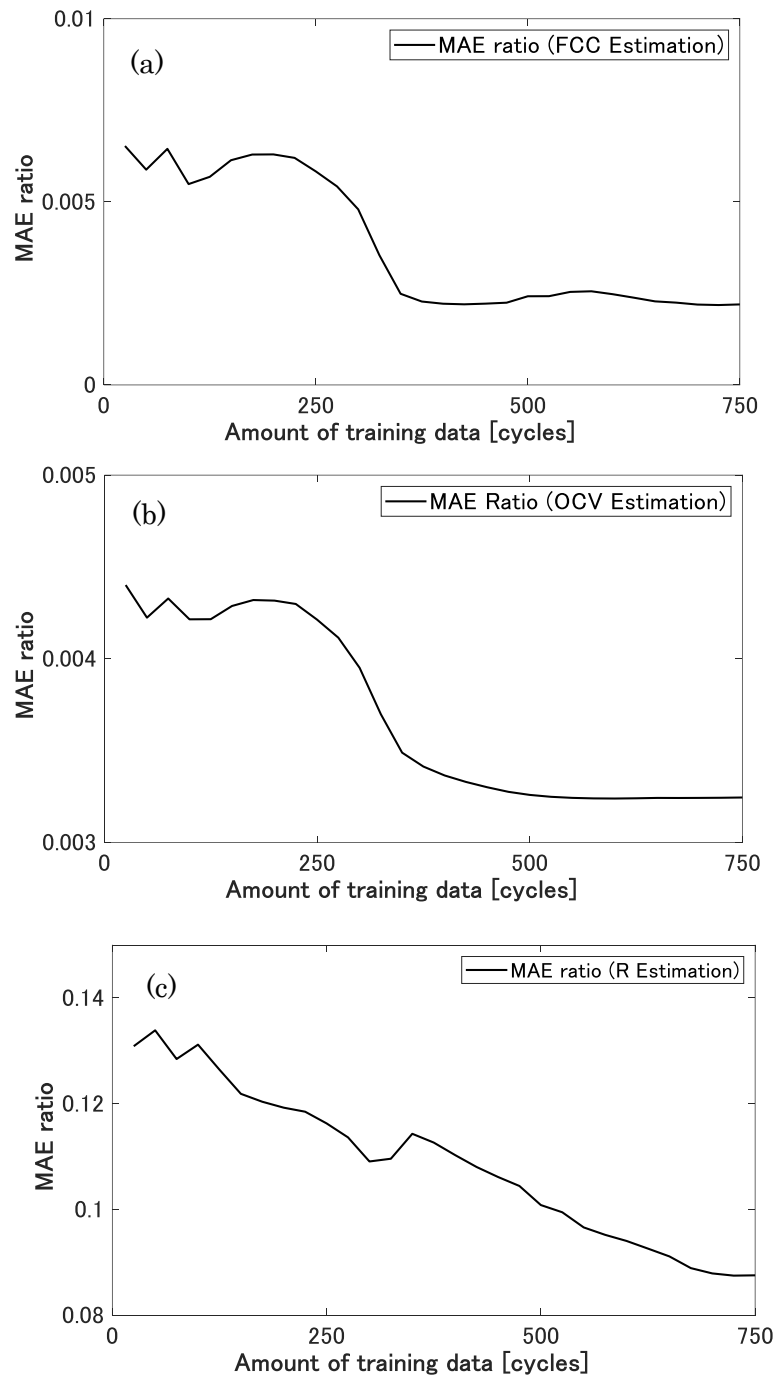


図 4-1 $D_t = 10$ の時の、教師データ量および各パラメータ推定値(テストデータ：全 750 サイクル)の平均絶対誤差率の関係。(a)FCC 推定精度 (b)OCV 推定精度 (c)R 推定精度 [127]

である。BMS 計測値を用いてリチウムイオン蓄電池の状態を非破壊的に推定・診断する手法の一つとしてカルマンフィルタが挙げられる。SOC はカルマンフィルタによって高精度かつ逐次的に推定できることが知られている[82]。この SOC 推定の過程で R_{int} あるいは図 1-18 に示したような内部インピーダンス Z_{eq} の等価回路の回路定数を同時推定できる事が報告されており[87][88][89]、従って $R_{int}(S_{oc})$ を逐次推定する技術は存在する。また、カルマンフィルタによって S_{oc} の高精度逐次推定が可能であれば、FCC は式(7)によって推定可能[86]である。ところが、SOC と $V_{oc}(S_{oc})$ の高精度逐次推同時推定をカルマンフィルタで実施した場合、SOC の推定精度向上に伴って $V_{oc}(S_{oc})$ 推定精度が悪化する事例が知られている[90]。

リチウムイオン蓄電池モジュールの OCV 曲線は図 3-3(a)に示したように経時的に変化する。バッテリーアグリゲーションに含まれる種類や劣化状態が不明なリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断を実施する、あるいは蓄電池劣化モデルを生成するためには、運用しながら追従的に $V_{oc}(S_{oc})$ を学習する教師データなしの推定手法が必要である。既に式(55)~(59)として述べたように、 $V_{oc}(S_{oc})$ は連続関数である。仮に運用中に OCV を逐次推定できた場合、推定値はその時点での単一の値として得られる。一方、関数 $V_{oc}(S_{oc})$ は $0 \leq S_{oc} \leq 1$ の範囲で無数の値を持っている。この関数 $V_{oc}(S_{oc})$ を、1 点の S_{oc} に対する V_{oc} 推定値を使って補正した場合、補正点で $V_{oc}(S_{oc})$ が不連続になる。第 3 章で述べたように $V_{oc}(S_{oc})$ を含む主要パラメータの関数モデリングは、リチウムイオン蓄電池の劣化状態に係る情報を圧縮し、バッテリーアグリゲーション運用上の利便性を高めると考えられる。しかし前述の $V_{oc}(S_{oc})$ 逐次補正を繰り返し実施した場合、 $V_{oc}(S_{oc})$ が複数の点で不連続となって関数へのフィッティングが不安定化することが容易に想定される。また、正確な $V_{oc}(S_{oc})$ を微分することで放電曲線微分法[34]と同様の分析を実施できるが、不連続な $V_{oc}(S_{oc})$ は微分を不可能にする。従って、1 点のデータとして得られる OCV の逐次推定値をもとに、切れ目なく滑らかに $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線を補正する手法が求められる。

そこで本章検討では、画像変形処理技術として報告されている GFFD(Gaussian Free-Form Deformation)[99]を参考とし、非破壊かつ教師データ無しの $V_{oc}(S_{oc})$ 学習・推定手法 MGFFD を提案し、効率劣化診断手法に適用する際の有効性を検証した[114]。MGFFD の検討については 4.3 節で説明する。なお、本論文末尾の共通条件(1)に記載の通り、電流・電力の値について充電を正、放電を負と定義した。

4.2 ニューラルネットワークによる蓄電池劣化モデル生成

本検討で用いた NN は単層の隠れ層を持った 3 層パーセプトロンであり，その構造は図 4-2 に示すとおりである．検討に用いた蓄電池時系列データは，本論文末尾の共通条件(2)により得られた定電力充放電サイクルデータである．バッテリーアグリゲーションの DER としての運用を想定し，NN の入力データはバイアスパラメータと，BMS での取得が容易なモジュールの電圧，電流，SOC とした．このうち電圧は図 2-1 で $D_t = 10$ とした放電サンプリング電圧 $V_{dsam,10}$ とした．これは第 3 章で用いた差電圧指標 $V_{diff,10}$ とは異なるが， $V_{diff,10} = V_{c,max} - V_{dsam,10}$ であることと $V_{c,max}$ が定値であることから，NN の入力として実質的に同じと考えた．すなわち，NN に対する常時一定の値 $V_{c,max}$ が $V_{diff,10}$ として間接的に入力されるかどうかは，ノード間結合の重みの学習によって調整されて結果的に同じ出力に帰着すると考えた．また，電流と SOC も電圧と同様に満充電状態からの放電開始後 10 s における値とし，SOC は各サイクルで実測された C_{fc} に基づいて算出した．バイアスパラメータは 1 とした．入力バッチデータはサイクル毎の電圧，電流，SOC を組み合わせたものとした．NN の学習は以下に述べる順伝播と逆伝播を繰り返す誤差逆伝播法[94][128][129]によって実施した．

NN の数理モデルについて説明する．NN の入力層のノード数を n_{in} ， i 番目の入力層ノードへの入力値を $I_{NN,i}$ とすると，NN の入力層へ導入する入力バッチデータの値 I_{NN} は

$$I_{NN} = [I_{NN,1}, I_{NN,2}, \dots, I_{NN,n_{in}}] \quad (64)$$

と表せる．なおバイアスパラメータとして常に $I_{NN,1} = 1$ とした．次に隠れ層のノード数を n_{hid} とし， i 番目の隠れ層ノードへの入力層側から隠れ層への順伝播を $P_{ih,i}$ ，出力層側から

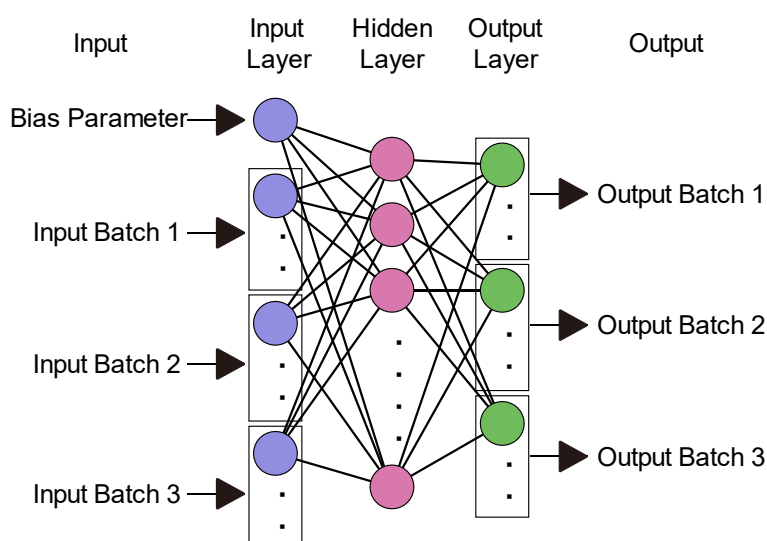


図 4-2 本章検討で用いた NN の構造[127]

隠れ層への逆伝播を $P_{oh,i}$ とすると、隠れ層への順伝播入力 P_{ih} および逆伝播入力 P_{oh} はそれぞれ

$$P_{ih} = [P_{ih,1}, P_{ih,2}, \dots, P_{ih,n_{hid}}] \quad (65)$$

$$P_{oh} = [P_{oh,1}, P_{oh,2}, \dots, P_{oh,n_{hid}}] \quad (66)$$

と表せる。また、出力層のノード数を n_{out} とし、 i 番目の出力層ノードへの出力値を $O_{NN,i}$ とすると、NNの出力層からの出力値 O_{NN} は

$$O_{NN} = [O_{NN,1}, O_{NN,2}, \dots, O_{NN,n_{out}}] \quad (67)$$

と表せる。さらに、 i 番目の入力層ノードと j 番目の隠れ層ノードとのノード結合の重みを $W_{IN,i,j}$ とし、また i 番目の隠れ層ノードと j 番目の出力層ノードとのノード結合の重みを $W_{OUT,i,j}$ とすると、入力層側ノード結合重み W_{IN} および出力層側ノード結合重み W_{OUT} は

$$W_{IN} = \begin{bmatrix} W_{IN,1,1} & \dots & W_{IN,1,n_{hid}} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ W_{IN,n_{in},1} & \dots & W_{IN,n_{in},n_{hid}} \end{bmatrix} \quad (68)$$

$$W_{OUT} = \begin{bmatrix} W_{OUT,1,1} & \dots & W_{OUT,1,n_{out}} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ W_{OUT,n_{hid},1} & \dots & W_{OUT,n_{hid},n_{out}} \end{bmatrix} \quad (69)$$

と表せる。加えて、 i 番目の隠れ層ノードでは $P_{ih,i}$ に対して活性化関数 $f(P_{ih,i})$ による数値変換を行うので、活性化ベクトル A_{hid} を

$$A_{hid} = [f(P_{ih,1}), f(P_{ih,2}), \dots, f(P_{ih,n_{hid}})] \quad (70)$$

と定義する。

NNの学習過程を説明する。まず I_{NN} がNNに入力されると、

$$P_{ih} = I_{NN} W_{IN} \quad (71)$$

で P_{ih} が隠れ層に順伝播される。次に式(70)で活性化による数値変換が行われたのち、

$$O_{NN} = A_{hid} W_{OUT} \quad (72)$$

で出力値 O_{NN} を算出する。本検討では出力層での活性化関数による数値変換は行わない。ここで理想的な出力値すなわち教師データである一組の理想出力バッチデータを T_{NN} とする。もちろん $n(O_{NN}) = n(T_{NN})$ である。理想出力バッチデータと実際のNNの出力値の誤差 ΔO_{NN} を

$$\Delta O_{NN} = O_{NN} - T_{NN} \quad (73)$$

で算出し、これを以下のように逆伝播するとともにノード間結合を学習させる。 W_{OUT} の更新値 $W_{OUT,upd}$ は、学習率 L_{OUT} (ただし $0 < L_{OUT} < 1$)に基づき

$$W_{OUT,upd} = W_{OUT} - L_{OUT} A_{hid}^T \Delta O_{NN} \quad (74)$$

となる。隠れ層ノードへの ΔO_{NN} の逆伝播 P_{oh} は、

$$P_{oh} = f'(P_{ih}) \odot (W_{OUT} \Delta O_{NN})^T \quad (75)$$

となり、 W_{IN} の更新値 $W_{IN,upd}$ は、学習率 L_{IN} (ただし $0 < L_{IN} < 1$)に基づき

$$W_{IN,upd} = W_{IN} - L_{IN} I_{NN}^T P_{oh} \quad (76)$$

となる。教師データに含まれる一組の入力バッチデータおよび出力バッチデータに対して式(64)~(76)の一連の処理を実施した後、 W_{IN} と W_{OUT} の値をそれぞれ $W_{IN,upd}$ と $W_{OUT,upd}$ の値に置き換えて、次の一組の入力バッチデータおよび出力バッチデータに対する式(64)~(76)の一連の処理を実施する。教師データに含まれるある一組の入力バッチデータおよび出力バッチデータに対して、式(64)~(76)の一連の処理が実施される事を、学習回数1回とした。本検討では、教師データの中から入力バッチデータと出力バッチデータのデータセットをランダムに抽出して学習を実施した。このNNの学習演算はMATLABでスクリプトを作成し実施した。

活性化関数 f について説明する。NNの活性化関数 f としては、シグモイド関数

$$f(x) = \frac{1}{1 + \exp(-x)} \quad (77)$$

あるいは双曲線正接関数

$$f(x) = \tanh x \quad (78)$$

あるいはReLU(Rectified linear unit)

$$f(x) = \begin{cases} x & (x \geq 0) \\ 0 & (x < 0) \end{cases} \quad (79)$$

がよく用いられている。活性化関数は式(75)に記載の通り、NNの学習過程で微分が要求

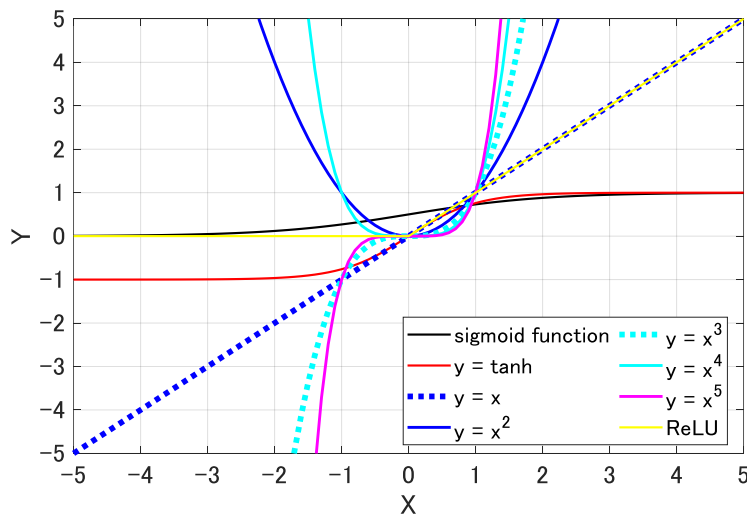


図 4-3 NNの活性化関数の候補

されるので、基本的にすべての x に対して微分可能かつ微分演算が簡単であることが要求される。ただし式(79)の ReLU のように $x = 0$ など微分不可能な点がある場合でも、近傍の微分値に近似することで NN が成立する例も存在する。微分可能かつ微分演算が簡単であれば良いので、適用事例は少ないものの $f(x) = x^\lambda$ ($\lambda = 1, 2, \dots$)のような関数も活性化関数になり得る。シグモイド関数、双曲線正接関数、ReLU は微分最大値に限界がある、あるいは絶対値の大きな入力 x に対する微分値が 0 になる飽和的非線形性によって、ユニット間結合重みの更新応答性が低下する、いわゆる勾配消失[130]あるいはそれに近い問題を孕んでいる。一方、 $f(x) = x^\lambda$ の場合は λ が 1 より大きければ微分最大値の限界がなく、この問題を解決できる可能性がある。以上に述べた活性化関数の候補を図 4-3 に示す。なお、ReLU は深層学習などで広く用いられる活性化関数であるが、 $y = x$ と基本的に同じであると考え、本章では検討しなかった。

FCC を推定する NN を構築するにあたり、まず各活性化関数に適した学習率 L_{IN} 、 L_{OUT} と隠れ層ノード数 n_{hid} をシステムチックに探索した。探索の基本条件を表 4.1 のとおりとして式(64)~(76)の一連の学習を行い、学習の最終段階での誤差 ΔO_{NN} の絶対平均が最小となった条件を最適条件とした。ここでは議論を簡単にするために $L_{IN} = L_{OUT}$ とし、 L_{IN} 、 L_{OUT} の探索分解能は 10 のべき乗指数で 0.25 とし、また n_{hid} の探索分解能は 100 とした。

表 4.1 FCC を推定する NN における L_{IN} 、 L_{OUT} および n_{hid} の最適条件を探索する際の共通条件

教師データ	共通条件(2)の 1~300 サイクルのデータ
入力バッチ	3 サイクルのデータ($n-5$, n , $n+5$ サイクル)
入力層ノード数 n_{in}	10 (バイアスパラメータ, バッチデータ×3 バッチ)
バッチデータ	電圧, 電流, SOC
出力バッチ	3 サイクルのデータ
出力層ノード数 n_{out}	3 (3 サイクルの FCC 値)
入力層側ノード結合重み W_{IN} の初期値	0~0.01 の範囲でランダム
出力層側ノード結合重み W_{IN} の初期値	0~1 の範囲でランダム
学習回数	100 回

各活性化関数に係る最適条件探索結果は表 4.2 の通りであった。表 4.1 および表 4.2 の条件と式(64)~(76)の一連の過程で NN を学習し、そこから FCC を推定した結果を活性化関数ごとに図 4-4 に示す。シグモイド関数および $y = \tanh x$ では FCC 推定値が全サイクルを通じて一定であり、学習時のこれら関数の微分値不足が示唆された。一方、 $y = \tanh x$ の最大微分値と同じ微分値を示す $y = x$ で推定結果が良好であったことから、 $y = \tanh x$ の問題は最大微分値ではなく、 x の絶対値が大きい時に微分値が 0 に近づくことだと考えられた。シグモイド関数も同様の問題と推察された。 $y = x$ および $y = x^3$ で良好な推定結果が示されたが、 $y = x^2$ ではシグモイド関数および $y = \tanh x$ に近い結果となった。

表 4.2 FCC 推定で各活性化関数を NN に用いた時の L_{IN} , L_{OUT} および n_{hid} の最適条件

活性化関数	L_{IN}, L_{OUT}	n_{hid}
sigmoid	$10^{-3.25}$	100
$y = \tanh x$	$10^{-3.5}$	1400
$y = x$	$10^{-6.5}$	400
$y = x^2$	$10^{-6.5}$	800
$y = x^3$	$10^{-6.75}$	1600
$y = x^4$	10^{-7}	1800
$y = x^5$	$10^{-7.5}$	1700

この結果からは、活性化関数による変換結果に負の値が含まれる必要性が推察された。 $y = x^4$ も $y = x^2$ と同様の結果となっており、この考察を支持した。さらにこのことは、ReLU が本手法での FCC 推定において活性化関数として適さない可能性を示唆している。また、 $y = x^5$ では $y = x^3$ と比較して FCC 推定精度が低下した。これは微分値が過大であったと考えられる。

$y = x$ および $y = x^3$ の推定精度はほぼ同等であったので、これらの活性化関数を用いた場合の教師データ削減効果について検討した。表 4.1 および表 4.2 の条件のうち教師データ以外の条件と、式(64)~(76)の一連の過程で NN を学習し、その結果を図 4-1 の(a)と比較した。ここでは、教師データ量を 25~750 サイクルの範囲で 25 サイクルずつ変えて FCC 推定の平均絶対誤差を算出した。結果を図 4-5 に示す。なお、図では第 3 章の差電圧指標による蓄電池劣化モデル生成法は Voltage difference として記載した。

全ての教師データ量条件を通じて、 L_{IN} , L_{OUT} , n_{hid} , 活性化関数を最適化した NN を用いても、第 3 章式(54)と比較して顕著な推定精度の向上は認められず、推定精度が悪化する場合も多いことが判明した。従って本検討で実施した条件範囲において、FCC に係る蓄電池劣化モデル生成法としては NN よりも差電圧指標によるモデル式フィッティングが優れていると結論付けられた。

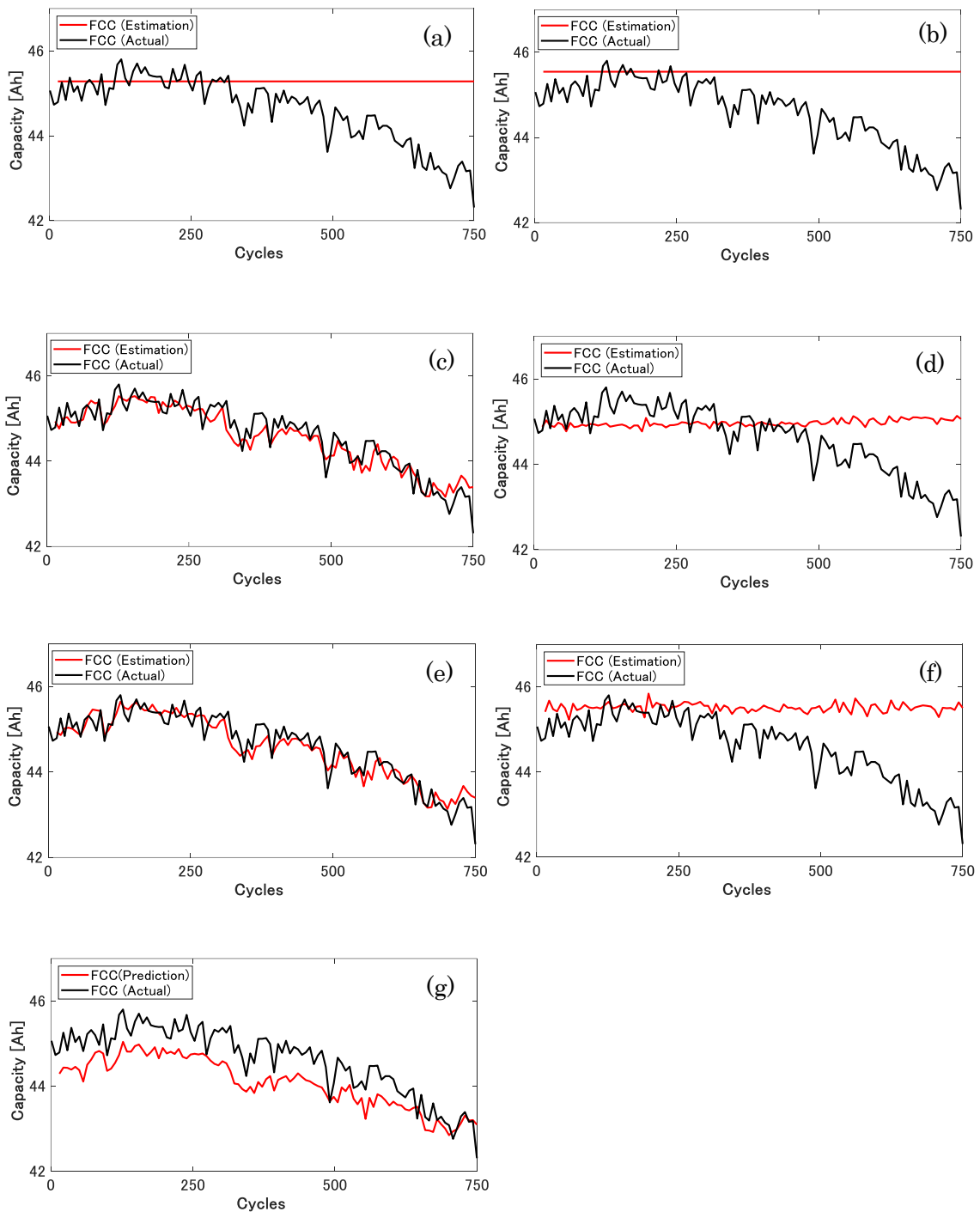


図 4-4 FCC 推定における活性化関数の影響. 1~300 サイクルは教師データ
 (a) sigmoid (b) $y = \tanh x$ (c) $y = x$ (d) $y = x^2$ (e) $y = x^3$ (f) $y = x^4$ (g) $y = x^5$

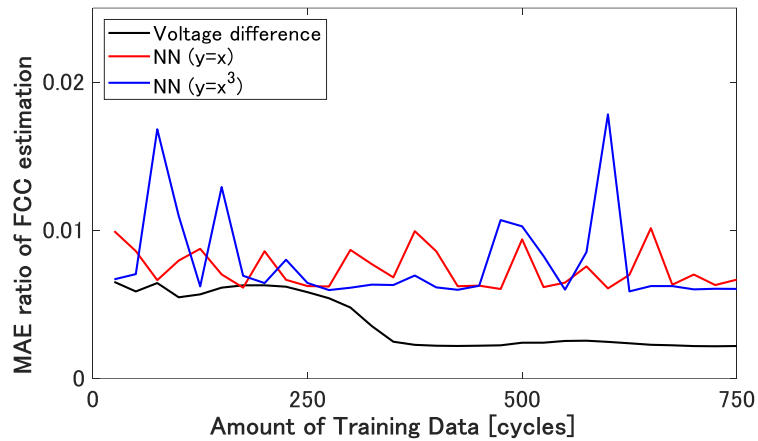


図 4-5 教師データ量と FCC 推定誤差の関係

OCV についても NN による蓄電池劣化モデル生成法を検討した。ただし OCV は FCC と異なり、1 サイクルあたり無数の値が存在するため、全く同一の方法で検討をすることができない。ここでは、 $S_{oc} = [0.01, 0.03, \dots, 0.99]$ に対応する 50 点の OCV データセットを 1 サイクル当たりの値とし、検討した。初めに OCV データセットを推定する NN の、各活性化関数に適した学習率 L_{IN} 、 L_{OUT} と隠れ層ノード数 n_{hid} を探索した。探索基本条件は表 4.3 に記載の通りとし、式(64)~(76)の一連の学習を行い、学習の最終段階での誤差 ΔO_{NN} の絶対平均が最小となった条件を最適条件とした。ここでも議論を簡単にするために $L_{IN} = L_{OUT}$ とし、 L_{IN} 、 L_{OUT} の探索分解能は 10 のべき乗指数で 0.25 とし、また n_{hid} の探索分解能は 10 とした。

表 4.3 OCV を推定する NN における L_{IN} 、 L_{OUT} および n_{hid} の最適条件を探索する際の共通条件

教師データ	共通条件(2)の 1~300 サイクルのデータ
入力バッチ	3 サイクルのデータ ($n-5$, n , $n+5$ サイクル)
入力層ノード数 n_{in}	10 (バイアスパラメータ, バッチデータ \times 3 バッチ)
バッチデータ	電圧, 電流, SOC
出力バッチ	3 サイクルのデータ (ただし 1 サイクルあたりのデータは、 $S_{oc} = [0.01, 0.03, \dots, 0.99]$ に対応する 50 点の OCV 値とした)
出力層ノード数 n_{out}	150 (3 サイクル分の OCV 値)
入力層側ノード結合重み W_{IN} の初期値	0~0.01 の範囲でランダム
出力層側ノード結合重み W_{IN} の初期値	0~1 の範囲でランダム
学習回数	100 回

各活性化関数に係る最適条件探索結果は表 4.4 に示す通りになった. なお, 最適条件探索の段階で $y = x^4$ および $y = x^5$ は誤差が相当に大きくなっており, この段階で候補から除外した. 表 4.3 および表 4.4 の条件と式(64)~(76)の一連の過程で NN を学習し, そこから OCV データセットを推定した結果を活性化関数ごとに図 4-6 に示す. OCV の正解値デ

表 4.4 OCV 推定で各活性化関数を NN に用いた時の L_{IN} , L_{OUT} および n_{hid} の最適条件

活性化関数	L_{IN}, L_{OUT}	n_{hid}
sigmoid	$10^{-2.5}$	40
$y = \tanh x$	10^{-3}	160
$y = x$	$10^{-6.75}$	80
$y = x^2$	$10^{-7.5}$	230
$y = x^3$	10^{-8}	200

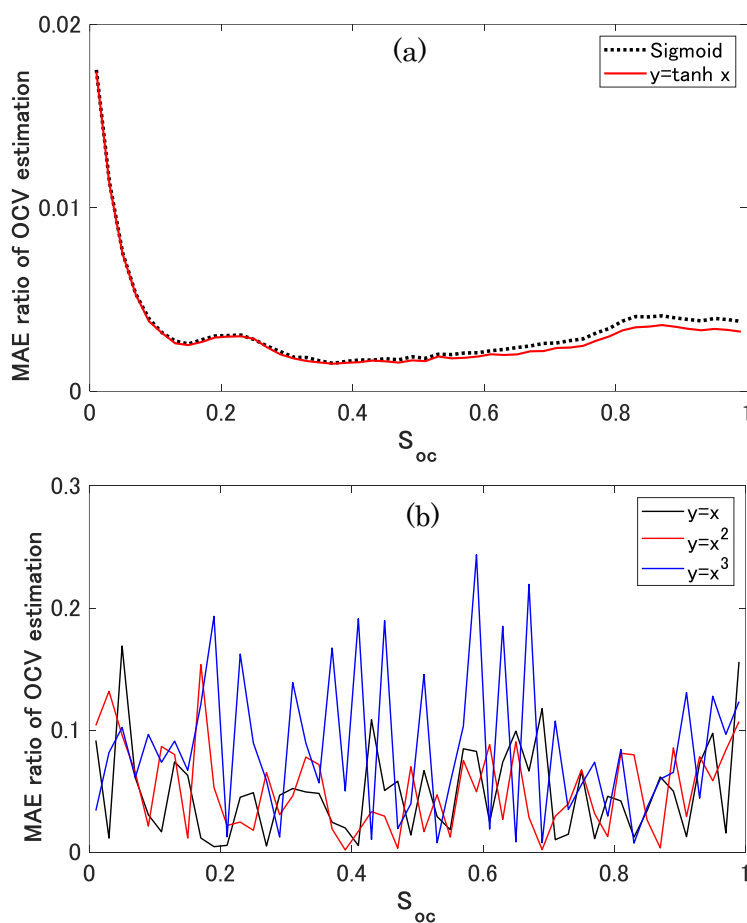


図 4-6 OCV 推定における活性化関数の影響

(a)シグモイド関数と $y = \tanh x$ (b) $y = x$, $y = x^2$, $y = x^3$

一タセットがサイクル毎に 50 要素あり，さらにその値がサイクル毎に異なるので，正解値と推定値の比較を単純にグラフに表現する事は困難である．従ってここではサイクル毎の各 $V_{oc}(S_{oc})$ の正解値と推定値の絶対誤差を算出し， S_{oc} 毎に平均をとって平均絶対誤差とし，グラフに示した．図 4-6(a)ではシグモイド関数および $y = \tanh x$ の場合を示しており，これら 2 つの関数はここで設定した条件において良好な推定精度を示した．高 SOC 側の状況を見ると， $y = \tanh x$ の方が比較的良好的な結果を示していた．図 4-6(b)では $y = x$ ， $y = x^2$ ， $y = x^3$ の結果を示した．これらの活性化関数の場合は平均絶対誤差が全体的に大きく，さらに各 S_{oc} 毎の平均絶対誤差のばらつきがあって不安定であった．以上の結果から本検討で実施した条件範囲において，OCV に係る蓄電池劣化モデル生成のための NN の活性化関数はシグモイド関数および $y = \tanh x$ が適していると判断した．

基本的にシグモイド関数と $y = \tanh x$ の OCV 推定精度はほぼ同等であったので，これらの活性化関数を用いた場合の教師データ削減効果について検討した．表 4.3 および表 4.4 の条件のうち教師データ以外の条件と，式(64)~(76)の一連の過程で NN を学習し，その結果を図 4-1 の(b)と比較した．ここでも教師データ量を 25~750 サイクルの範囲で 25 サイクルずつ変えて，各 $V_{oc}(S_{oc})$ 推定値の全てをまとめた平均絶対誤差を算出した．結果を図 4-7 に示す．なお，図では第 3 章の差電圧指標による蓄電池劣化モデル生成法を Voltage difference として記載した．シグモイド関数と $y = \tanh x$ を活性化関数とした NN により，第 3 章の OCV に係る蓄電池劣化モデル生成法を上回る推定精度を示せることがわかった．第 3 章のモデル生成法では教師データ量を約 400 サイクル以上とした時に推定精度が良好かつ安定したが，これと同水準の推定精度を，シグモイド関数では約 200 サイクル， $y = \tanh x$ では約 150 サイクルの教師データ量で示すことができた．従って，シグモイド関数や $y = \tanh x$ を活性化関数とした NN を用いる事によって，OCV に係る蓄電池劣化モデル生成のための教師データ量を低減することができる．

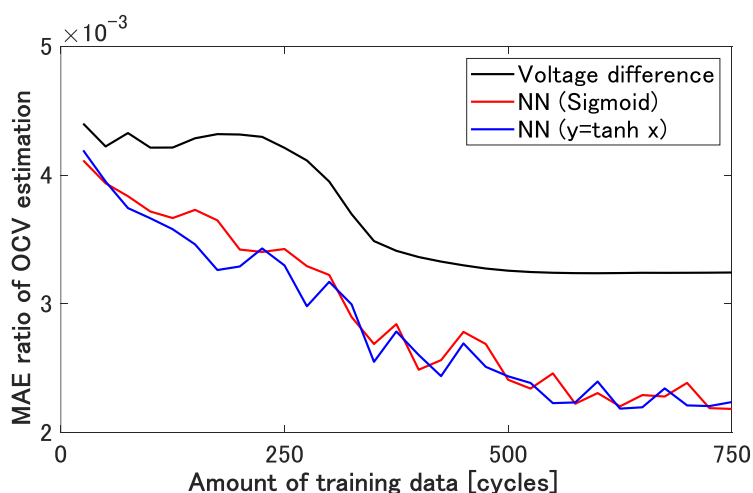


図 4-7 教師データ量と OCV 推定誤差の関係

Rに係る蓄電池劣化モデル生成法についても NN の適用を検討した。R も OCV と同様に、 $S_{oc} = [0.01, 0.03, \dots, 0.99]$ に対応する 50 要素の R データセットを 1 サイクル当たりの値とし、検討した。初めに R データセットを推定する NN の、各活性化関数に適した学習率 L_{IN} 、 L_{OUT} と隠れ層ノード数 n_{hid} を探索した。探索基本条件は表 4.5 に記載の通りとし、式(64)~(76)の一連の学習を行い、学習の最終段階での誤差 ΔO_{NN} の絶対平均が最小となった条件を最適条件とした。ここでも議論を簡単にするために $L_{IN} = L_{OUT}$ とし、 L_{IN} 、 L_{OUT} の探索分解能は 10 のべき乗指数で 0.25 とし、また n_{hid} の探索分解能は、シグモイド関数および $y = \tanh x$ では 100 とし、 $y = x$ 、 $y = x^2$ 、 $y = x^3$ では 10 とした。

表 4.5 R 推定で NN における L_{IN} 、 L_{OUT} および n_{hid} の最適条件を探索する際の共通条件

教師データ	共通条件(2)の 1~300 サイクルのデータ
入力バッチ	3 サイクルのデータ($n-5$, n , $n+5$ サイクル)
入力層ノード数 n_{in}	10 (バイアスパラメータ, バッチデータ×3 バッチ)
バッチデータ	電圧, 電流, SOC
出力バッチ	3 サイクルのデータ(ただし 1 サイクルあたりのデータは、 $S_{oc} = [0.01, 0.03, \dots, 0.99]$ に対応する 50 点の R 値とした)
出力層ノード数 n_{out}	150 (3 サイクル分の R 値)
入力層側ノード結合重み W_{IN} の初期値	0~0.01 の範囲でランダム
出力層側ノード結合重み W_{IN} の初期値	0~1 の範囲でランダム
学習回数	100 回

各活性化関数に係る最適条件探索結果は表 4.6 の通りであった。なお、最適条件探索の段階で $y = x^4$ および $y = x^5$ は誤差が相当に大きくなっており、この段階で候補から除外した。表 4.5 および表 4.6 の条件のうち教師データ以外の条件と、式(64)~(76)の一連の過程で NN を学習し、そこから R データセットを推定した。ここでは、教師データ量を 25~750 サイクルの範囲で 25 サイクルずつ変えて、各サイクルにおける $R(S_{oc})$ を推定した。結果を図 4-8 に示す。

表 4.6 R 推定において各活性化関数を NN に用いた時の L_{IN} 、 L_{OUT} および n_{hid} の最適条件

活性化関数	L_{IN} , L_{OUT}	n_{hid}
sigmoid	$10^{-3.5}$	2200
$y = \tanh x$	10^{-3}	600
$y = x$	10^{-7}	130
$y = x^2$	$10^{-7.25}$	150
$y = x^3$	$10^{-7.5}$	120

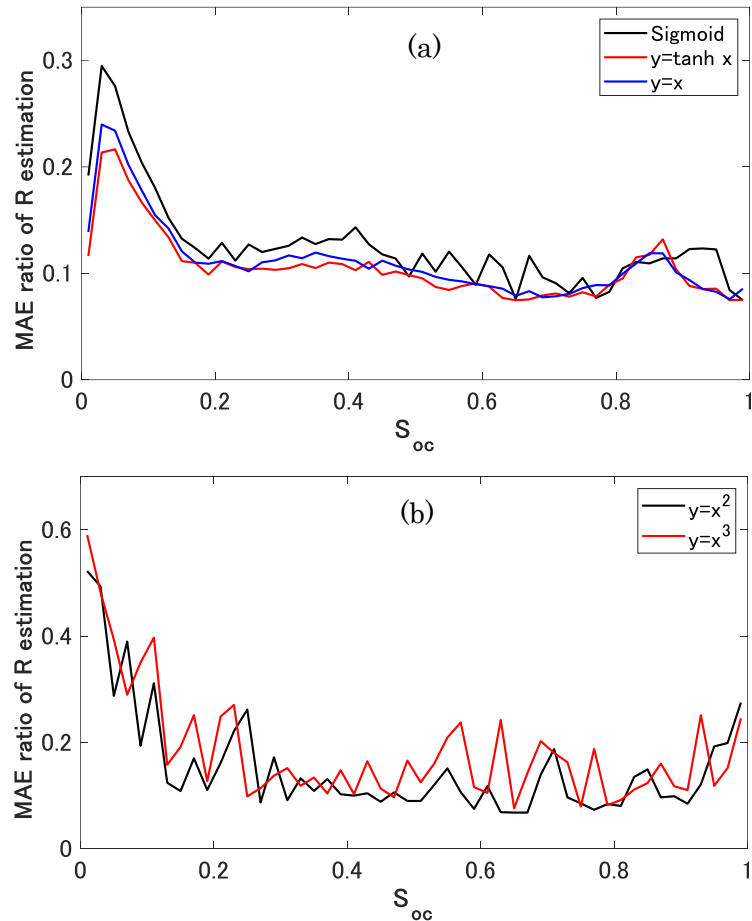


図 4-8 R 推定における活性化関数の影響.
 (a)シグモイド関数, $y = \tanh x$, $y = x$ (b) $y = x^2$, $y = x^3$

R の正解値データセットも OCV と同様にサイクル毎に 50 要素あるので、ここでも各活性化関数における $R(S_{oc})$ の正解値と推定値の絶対誤差を算出し、 S_{oc} 毎に平均をとって平均全体誤差とし、グラフに示した。図 4-8(a)ではシグモイド関数、 $y = \tanh x$ 、 $y = x$ の場合を示しており、3 つの活性化関数の中ではシグモイド関数の推定精度がわずかに劣っていた。図 4-8(b)では $y = x^2$ 、 $y = x^3$ の場合を示したが、これら 2 つの活性化関数は全体的に推定精度が悪く、また不安定でもあった。

基本的にシグモイド関数、 $y = \tanh x$ 、 $y = x$ の推定精度はほぼ同等であったので、これらの活性化関数を用いた場合の教師データ削減効果について検討した。表 4.5 および表 4.6 の条件のうち教師データ以外の条件と、式(64)~(76)の一連の過程で NN を学習し、その結果を図 4-1 の(c)と比較した。ここでも教師データ量を 25~750 サイクルの範囲で 25 サイクルずつ変えて、各 $R(S_{oc})$ 推定値の全てをまとめた平均絶対誤差を算出した。結果を図 4-9 に示す。なお、図では第 3 章の差電圧指標を用いた蓄電池劣化モデル生成法を

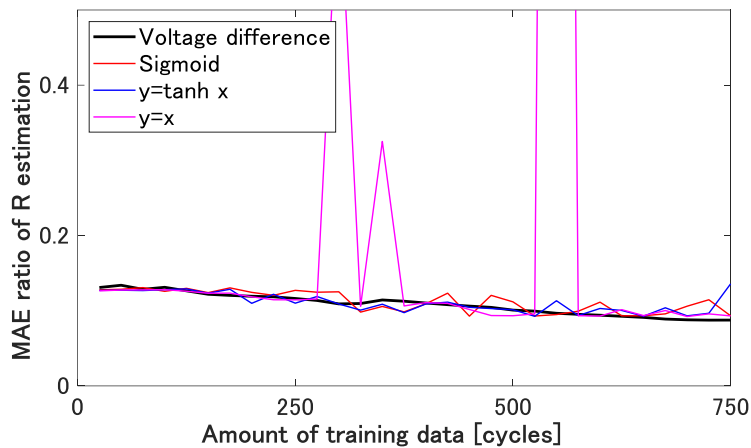


図 4-9 教師データ量と R 推定誤差の関係

Voltage difference として記載した。本検討の条件において、 $y = x$ は意外にも一部の教師データ量での推定結果が大きく不安定化しており、図 4-8(a)の結果にもかかわらず適用困難であると判断された。一方、シグモイド関数および $y = \tanh x$ はともに差電圧指標を用いた場合と推定精度がほぼ同等であった。従って、本検討で実施した条件範囲において、Rに係る蓄電池劣化モデルの生成法としての NN は教師データ削減効果を示さなかった。

ここまでの NN の検討結果を踏まえ、OCVに係る蓄電池劣化モデル生成法を NN に変更することによる教師データ量削減効果の検討を行った。FCC と R に係る蓄電池劣化モデル生成法は第 3 章と同じ差電圧指標を用いる手法とした。ここでは OCV に係る NN の活性化関数としてシグモイド関数と $y = \tanh x$ を用い、NN の条件は教師データ以外を表 4.3 および表 4.4 のものとした。蓄電池劣化モデル生成の際に使用する教師データ量は 25 ~ 750 サイクルの範囲で 25 サイクルずつ変え、その際の充放電エネルギー推定精度を第 3 章手法と比較した。結果を図 4-10 に示す。図 4-7 に示したとおり OCV に係る蓄電池劣化モデル生成において NN は第 3 章手法と比較して優位性を示した。しかしこれを利用したにもかかわらず充放電エネルギー推定では NN による教師データ低減効果が示されず、推定精度はほぼ同等、あるいはやや悪化した。この結果は、NN による OCV の蓄電池劣化モデル生成の際、一度式(55)に変換したうえで充放電エネルギー推定に用いたことによって、誤差が生じた可能性が考えられる。

本検討では FCC, OCV, R に係る蓄電池劣化モデル生成を、システムチックに最適条件を探索した NN によって実施したものの、第 3 章手法と比較して教師データ低減効果を示さなかった。一方、人為的かつ恣意的に NN のハイパーパラメータを設定し実施した過去の検討事例では、FCC, OCV, R それぞれの蓄電池劣化モデル生成において教師データ低減効果が示され、結果として充放電エネルギー推定においても教師データ低減効果が認められた[127]。現状では入力バッチ数、重みの初期値、学習回数などを中心に未検討のハイ

パーパラメータが存在している。これらを踏まえ、実用に耐えうるシステムチックな NN の最適条件探索によって充放電エネルギー推定の教師データ削減を実現する事が今後の課題である。

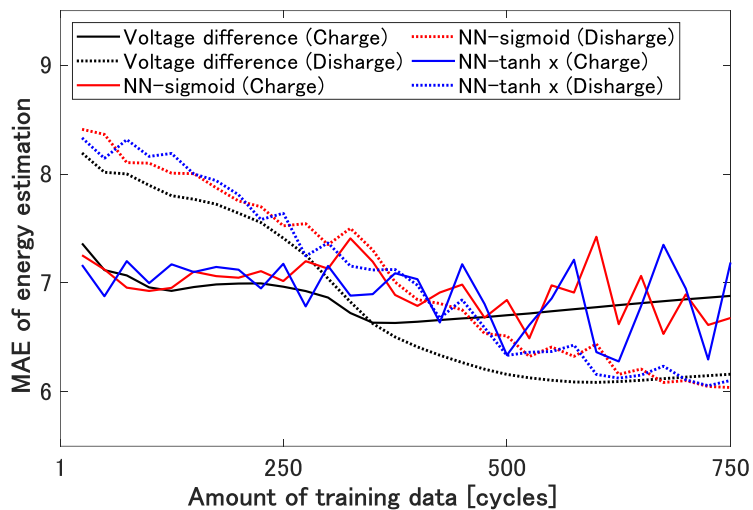


図 4-10 充放電エネルギー推定における差電圧指標と NN の推定誤差

4.3 MGFFD による蓄電池劣化モデル生成

図形を切れ目なく滑らかに変形する画像処理法としてフリーフォーム変形(Free-form deformation)が知られている。このフリーフォーム変形は、変形対象であるモデル図形に複数の制御点を設置し、これらの制御点を操作点として任意に移動してモデル図形を変形する手法である。直感的なフリーフォーム変形の一つの事例としてガウス関数に基づくフリーフォーム変形(GFFD: Gaussian free-form deformation)がある[99]。GFFD は図形に多数の制御点を設定しそれぞれに重みと標準偏差を設定する。制御点の一つを操作点として重みを変化させると、制御点が移動すると同時に、操作点変位に滑らかに追従して周囲の制御点が移動する。この周囲の制御点の追従的変形の範囲は、操作点に設定された標準偏差によってガウス関数として決定づけられる。すなわち、操作点の移動によるモデル図形の追従的変形の影響範囲は標準偏差で制御できるということになる。

二次元の有理ガウス曲線における GFFD の定義は、 n_{cont} 個の制御点 $V_{cont,i}$ の集合体として表現されるモデル図形の座標群ベクトルを $P_{gffd}(X_{gffd}, Y_{gffd})$ とすると

$$(X_{gffd}, Y_{gffd}) = \sum_{i=1}^{n_{cont}} V_{cont,i} B_{gffd,i}(S_{2d})$$

$$\text{ただし } B_{gffd,i}(S_{2d}) = \frac{W_{gffd,i} G_{gffd,i}(S_{2d})}{\sum_{j=1}^{n_{cont}} W_{gffd,j} G_{gffd,j}(S_{2d})}, \quad (80)$$

$$G_{gffd,i}(S_{2d}) = \exp\left\{-\frac{(S_{2d} - S_{gffd,i})^2}{2\sigma_{gffd,i}^2}\right\}$$

である。ここで、 $W_{gffd,i}$ と $\sigma_{gffd,i}$ はそれぞれモデル図形上の i 番目の制御点 $V_{cont,i}$ の重みと標準偏差である。また、 $B_{gffd,i}(S_{2d})$ は i 番目の制御点 $V_{cont,i}$ に対応した曲線の基底関数である。なお、ここでの i 番目の制御点 $V_{cont,i}$ の座標は $(S_{gffd,i}, T_{gffd,i})$ であり、また S_{2d} は二次元モデル図形が展開され得る領域として定義された平面上の座標ベクトル第一成分の全集合である。すなわち、たとえば二次元モデル図形が展開され得る領域が座標ベクトル $(0,0), (0,2), (1,0), (1,2)$ の 4 点で囲まれた領域と定義された場合、 $0 \leq S_{2d} \leq 1$ ($S_{2d} \in \mathbb{R}$) となる。

ここで、リチウムイオン蓄電池の $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線の学習推定を想定した二次元有理ガウス曲線のモデル図形の例として、3 つの制御点 $V_{cont,1}(0,0)$, $V_{cont,2}(0.3,1)$, $V_{cont,3}(1,0)$ を定義し、 $[S_{gffd,1}, S_{gffd,2}, S_{gffd,3}] = [0, 0.3, 1]$ とした単純なモデルを検討する。ここでの操作点は $V_{cont,2}$ とし、 $V_{cont,2}$ に対応する重み $W_{gffd,2}$ を 0 として他の制御点 $V_{cont,1}$ および $V_{cont,3}$ で定義される直線を変形する。このときの $V_{cont,1}$, $V_{cont,3}$ に対応する重み $W_{gffd,1}$, $W_{gffd,3}$ はともに 1 である。重み $W_{gffd,2}$ を正の値の方向に増加させて 1 とすると、元々直線であったモデル図形が操作点 $V_{cont,2}$ に向かって滑らかに変形する。さらに重み $W_{gffd,2}$ の値を増加させると、モデル図形の変形量が大きくなり、その頂点がさらに操作点 $V_{cont,2}$ に近づく。このとき、操作点 $V_{cont,2}$ に対応する標準偏差 $\sigma_{gffd,2}$ の値によって元のモデル図形である直線の変形範囲が決まるが、変形の影響範囲が直線の端部を含む場合には、変形後の図形の端部が操作点

$V_{cont,2}$ に向かって引き込まれるように移動する。この様子を図 4-11 に示した。図 4-11 において、 $\sigma_{gffd,2}$ の値を 0.16 あるいは 0.32 とした場合に、変形の影響範囲が直線の端部を含んで変形後の図形の端部が操作点 $V_{cont,2}$ 方向に引き込まれている様子が示されている。

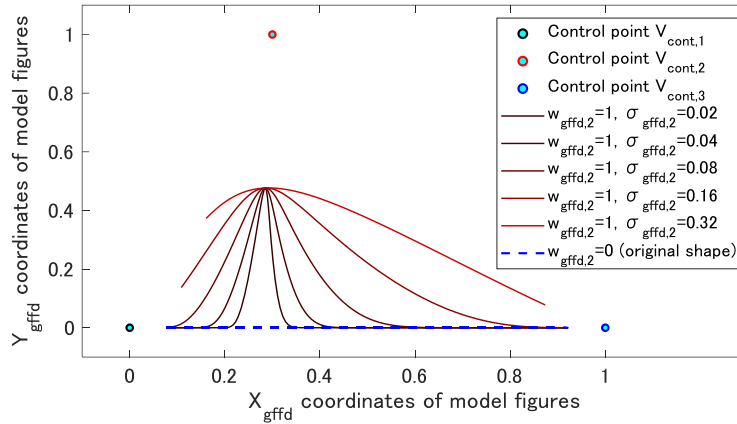


図 4-11 制御点 $V_{cont,1}$, $V_{cont,3}$ に対応する標準偏差および重みを $\sigma_{gffd,1} = \sigma_{gffd,3} = 0.45$ および $W_{gffd,1} = W_{gffd,3} = 1$ とした時に、 $V_{cont,2}$ を操作点として重み $W_{gffd,2}$ の値を 0 から 1 に変える GFFD によって描かれた二次元モデル図形 P_{gffd} 。ただし、変形時の操作点 $V_{cont,2}$ に対応する標準偏差 $\sigma_{gffd,2}$ の値を変えてその差を示した [114]

各サイクルの C_{fc} に基づいて式(10)で定義される S_{oc} に対しては、 $0 \leq S_{oc} \leq 1$ の範囲で $V_{oc}(S_{oc})$ の値が必ず 1 つ存在する。すなわち、リチウムイオン蓄電池の OCV の関数 $f_{ocv} = V_{oc}(S_{oc})$ において、

$$f_{ocv}: S_{oc} \rightarrow V_{oc} \quad \text{ただし} \quad 0 \leq S_{oc} \leq 1 \quad (81)$$

で示される写像の関係が定義として成立している。一方、図 4-11 に示した GFFD 変形のうち、 $\sigma_{gffd,2} = 0.16$ あるいは $\sigma_{gffd,2} = 0.32$ の事例では、モデル図形の端部引き込まれによって、変形後の図形で $X_{gffd} = 0$ あるいは $X_{gffd} = 1$ に近い領域の図形端部が縮退している。これをリチウムイオン蓄電池の $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線に置き換えて考察すると、 $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線を GFFD で変形した際に変形影響範囲が $S_{oc} = 0$ あるいは $S_{oc} = 1$ を含んでいると、変形後の $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線で写像(81)の定義的關係が成立しなくなる。従って、GFFD をリチウムイオン蓄電池の $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線の切れ目なく滑らかな変形学習推定に適用する事ができない。そのほか、図 4-11 に示したように制御点 $V_{cont,1}$, $V_{cont,3}$ の座標とモデル図形の端部が一致しない問題が挙げられる。これはモデル図形端部の座標を狙い値として設定する事が難しい事を示しており、モデル図形に $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線を当てはめるためには、より直感的にモデル図形形状を決定できる手法が望ましい。

そこで GFFD の切れ目なく滑らかなモデル図形変形能力を維持しつつ、図形端部における式(81)の写像の不成立の問題を解決するために、GFFD を修正してガウス関数を直接加

算する手法を検討した. すなわち, リチウムイオン蓄電池の $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線においては, 直接ガウス関数を加算して S_{oc} 軸に垂直な方向へ曲線を変形する事を想定した手法である. 以降ではこの手法を Modified GFFD(MGFFD)と表記する. MGFFD 変形前のモデル図形の座標群ベクトルを $F_{os}(S_{mgffd}, T_{mgffd})$ とし, MGFFD 変形されたモデル図形の座標群ベクトルを $P_{mgffd}(X_{mgffd}, Y_{mgffd})$ として,

$$(X_{mgffd}, Y_{mgffd}) = F_{os} + D_{mgffd} \quad (82)$$

ただし $D_{mgffd} = (0,1) \times W_{mgffd} G_{mgffd}$, $G_{mgffd} = \exp\left(-\frac{(S_{mgffd}-C_{mgffd})^2}{2\sigma_{mgffd}^2}\right)$

と定義した. ここで D_{mgffd} は MGFFD の変形量, W_{mgffd} は重み, σ_{mgffd} は MGFFD 変形の変形影響範囲を決める標準偏差, C_{mgffd} は MGFFD 変形の中心の座標の第一要素の値である. 式変形後のモデル図形 $P_{mgffd}(X_{mgffd}, Y_{mgffd})$ は, 変形前のモデル図形 $F_{os}(S_{mgffd}, T_{mgffd})$ に C_{mgffd} を中心軸とした高さ1, 標準偏差 σ_{mgffd} のガウス関数 G_{mgffd} を, 重み W_{mgffd} を乗じて加算したものである. ガウス関数の中心軸とモデル図形 $F_{os}(S_{mgffd}, T_{mgffd})$ との交点に操作点 $V_{mgffd}(C_{mgffd}, T_{mgffd,c})$ があり, この操作点を $V_{mgffd*}(C_{mgffd}, T_{mgffd,c} + W_{mgffd})$ まで移動すると考える事ができる. ここでは例として $S_{mgffd} = [0,1]$, $T_{mgffd} = \mathbf{0}$ とした変形前のモデル図形 F_{os} を設定し, V_{mgffd} を $(0.3, 0)$, 重み $W_{mgffd} = 0.5$ として, 様々な標準偏差 σ_{mgffd} で変形した. その結果を図 4-12 に示す. 図 4-11 の GFFD と同様に, σ_{mgffd} の値を 0.16 および 0.32 とした場合に変形の影響範囲が変形前モデル図形 F_{os} の端部を含んでいるが, 切れ目なく滑らかに変形できた一方で F_{os} の端部が変形後の操作点 V_{mgffd*} の方向に引き込まれる事はなかった. 従って, この MGFFD であればリチウムイオン蓄電池の $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線を, 式(81)の写像を維持しながら切れ目なく滑らかに変形することが可能である. さらに, 図 4-11 の GFFD では変形後の頂点の座標が

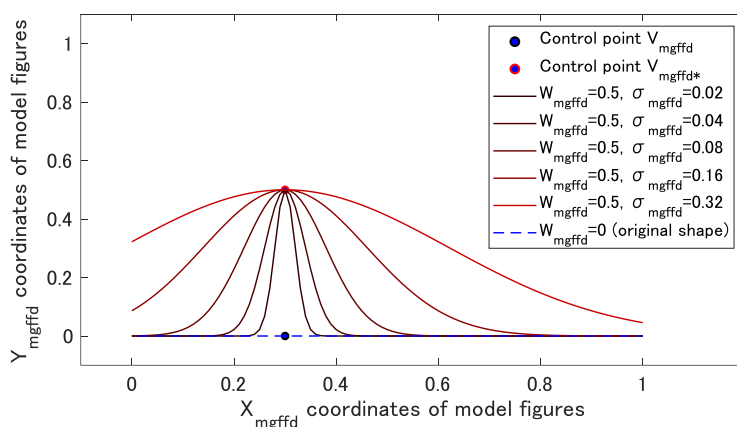


図 4-12 V_{mgffd} を操作点として重み $W_{mgffd} = 0.5$ の MGFFD によって, V_{mgffd*} まで切れ目なく滑らかに変形して描かれた二次元モデル図形 P_{mgffd} . ただし, 変形時の標準偏差 σ_{mgffd} の値を変えてその差を示した [114]

他の制御点の重みの影響を受けて操作点 $V_{cont,2}$ とは異なる位置となったが、MGFFD では変形後の頂点の座標が操作点 $V_{mgffd}(C_{mgffd}, T_{mgffd,c})$ から第二要素に重み W_{mgffd} を加算した $V_{mgffd}*(C_{mgffd}, T_{mgffd,c} + W_{mgffd})$ になるだけであるから、変形を直観的に実施する事ができる。もちろん、変形前のモデル図形 $F_{os}(S_{mgffd}, T_{mgffd})$ が直観的に設定できることは言うまでもない。

ここではあらかじめ、リチウムイオン蓄電池モジュールの現在の開回路電圧推定値 \hat{V}_{oc} および直流内部抵抗推定値 \hat{R}_{int} を算出するための、OCV モデル式(55)の係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ およびR モデル式(60)の係数 $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ の値を持っているものとする。これらの係数の値がその時点のリチウムイオン蓄電池モジュールのOCV およびR を表現する真の値から乖離している場合、これらモデル式から推定された \hat{V}_{oc} および \hat{R}_{int} は、それらの真の値との間に誤差 \tilde{V}_{oc} および \tilde{R}_{int} を含み、計測された値 $V_{c,d}$ および $I_{c,d}$ と

$$V_{c,d} = \{\hat{V}_{oc} + \tilde{V}_{oc}\} + \{\hat{R}_{int} + \tilde{R}_{int}\}I_{c,d} \quad (83)$$

の関係になる。式(55)(60)で推定した \hat{V}_{oc} および \hat{R}_{int} と実際に計測された $I_{c,d}$ を用いて式(39)(40)の関係から $\hat{V}_{c,d}$ を推定でき、計測された $V_{c,d}$ から減ざると誤差 $\tilde{V}_{oc} + \tilde{R}_{int}I_{c,d}$ が得られる。本章検討では便宜的に V_{oc} と $R_{c,d}$ の充放電電圧推定誤差 $\tilde{V}_{c,d}$ への寄与度が等しいものとした。すなわち、

$$\frac{1}{2}(V_{c,d} - \hat{V}_{c,d}) = \tilde{V}_{oc} = \tilde{R}_{int}I_{c,d} \quad (84)$$

の関係が成立するものとした。特に OCV 推定の議論をするために式(84)では特に \tilde{V}_{oc} に注目して学習に用いる事とした。

OCV の学習は、式(84)で得られた \tilde{V}_{oc} をMGFFDの変形によって $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ に反映し、これを式(55)の係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ にフィードバックすることによって行う。まず、 \hat{V}_{oc} をSOCの標本値ベクトル $S_{oc,dig} = [0.01, 0.02, \dots, 0.99]$ に対応する標本値ベクトル

$$\hat{V}_{oc} = \begin{bmatrix} K_{ocv,1} \\ K_{ocv,2} \\ K_{ocv,3} \\ K_{ocv,4} \\ K_{ocv,5} \end{bmatrix}^T [M_{ocv,1}, M_{ocv,2}, \dots, M_{ocv,99}] = \begin{bmatrix} \hat{V}_{oc,1} \\ \hat{V}_{oc,2} \\ \vdots \\ \hat{V}_{oc,99} \end{bmatrix}^T \quad (85)$$

$$\text{ただし } M_{ocv,i} = \begin{bmatrix} 1 \\ 10^2 i^{-1} \\ 10^{-2} i \\ \ln(10^{-2} i) \\ \ln(1 - 10^{-2} i) \end{bmatrix}, \quad 1 \leq i \leq 99, \quad i \in \mathbb{N}$$

とする。ここで $S_{oc,dig}$ に0および1を含まないのは、式(85)の $M_{ocv,i}$ の第四成分および第五成分の発散を防ぐためである。また、式(84)を用いて充放電サイクル時系列データから \tilde{V}_{oc} を得た時のSOCの値を $S_{oc,ts}$ とする。 \hat{V}_{oc} をMGFFDで学習した後の値 $\hat{V}_{oc,mgffd}$ は、 \tilde{V}_{oc} と学習率 $L_{mgffd,ocv}$ の積をピークとした標準偏差 $\sigma_{mgffd,ocv}$ のガウス関数標本値ベクトル

$D_{mgffd,ocv}$ を変形量として加えた

$$\hat{V}_{oc,mgffd} = \hat{V}_{oc} + D_{mgffd,ocv} = \begin{bmatrix} \hat{V}_{oc,1} \\ \hat{V}_{oc,2} \\ \vdots \\ \hat{V}_{oc,99} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} D_{mgffd,ocv,1} \\ D_{mgffd,ocv,2} \\ \vdots \\ D_{mgffd,ocv,99} \end{bmatrix} \quad (86)$$

$$\text{ただし } D_{mgffd,ocv,i} = \tilde{V}_{oc} L_{mgffd,ocv} \exp \left\{ -\frac{(10^{-2}i - S_{oc,ts})^2}{2\sigma_{mgffd,ocv}^2} \right\}$$

として表現できる. この MGFFD による学習のイメージを図 4-13 に示す. \hat{V}_{oc} を式(86)で得た標本値ベクトル $\hat{V}_{oc,mgffd}$ で更新し, 式(87)の評価関数 J_{ocv} が最小となるように係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ をフィッティングすることによって $V_{oc}(S_{oc})$ を学習する.

$$J_{ocv} = \left\| \begin{bmatrix} K_{ocv,1} \\ K_{ocv,2} \\ K_{ocv,3} \\ K_{ocv,4} \\ K_{ocv,5} \end{bmatrix} [M_{ocv,1}, M_{ocv,2}, \dots, M_{ocv,99}] - \hat{V}_{oc,mgffd} \right\| \quad (87)$$

MGFFD の変形量 $D_{mgffd,ocv}$ を算出するために必要な誤差 \tilde{V}_{oc} の値は, 既に持っている係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ および $S_{oc,ts}$ と式(55)から \hat{V}_{oc} を算出し, この \hat{V}_{oc} と実測値 $V_{c,d}$ から式(83)(84)で計算する. なお式(83)~(87)および図 4-13 で示した一連の $V_{oc}(S_{oc})$ 学習は, 1 回の実施ではただ一つの $S_{oc,ts}$ の周囲を学習率 $L_{mgffd,ocv}$ でわずかに補正しているに過ぎない. 広範囲の SOC 領域すなわち $0 \leq S_{oc} \leq 1$ の幅全体に対して学習による十分な補正を行き渡らせるためには, リチウムイオン蓄電池の安全上許容される可能な限り広範囲の SOC で充放電サイクルを行い, 結果として得られる時系列データから多様な $S_{oc,ts}$ における値を抽出して, 継続的に学習を繰り返す必要がある.

なお, 本章検討では $R_{int}(S_{oc})$ がカルマンフィルタによって精確に推定される[87][88][89]

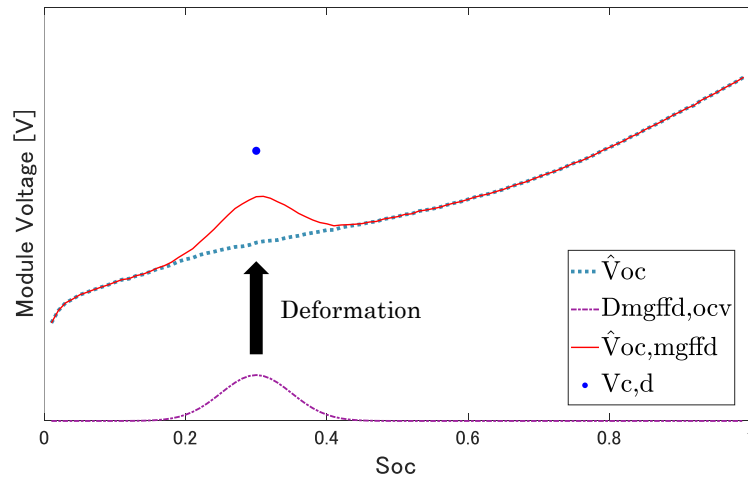


図 4-13 MGFFD による $V_{oc}(S_{oc})$ の学習のイメージ [114]

ことを想定し、式(83)において \hat{R}_{int} が真の値である、つまり $\tilde{R}_{int} = \mathbf{0}$ と仮定して検証を行ったが、MGFFDを $R_{int}(S_{oc})$ の学習に用いる事も可能である。その場合は、式(84)で得られる \tilde{R}_{int} をMGFFDの変形によって $\hat{R}_{int}(S_{oc})$ に反映し、これを式(60)の係数 $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ にフィードバックすることによって行う。すなわち、

$$\hat{R}_{int} = \begin{bmatrix} K_{R,1} \\ K_{R,2} \\ \vdots \\ K_{R,7} \end{bmatrix}^T [M_{R,1}, M_{R,2}, \dots, M_{R,99}] = \begin{bmatrix} \hat{R}_{int,1} \\ \hat{R}_{int,2} \\ \vdots \\ \hat{R}_{int,99} \end{bmatrix}^T \quad (88)$$

$$\text{ただし } M_{R,i} = \begin{bmatrix} (10^{-2}i)^0 \\ (10^{-2}i)^1 \\ \vdots \\ (10^{-2}i)^7 \end{bmatrix}, \quad 1 \leq i \leq 99, \quad i \in \mathbb{N}$$

とすると、 \hat{R}_{int} をMGFFDで学習した後の値 $\hat{R}_{int,mgffd}$ は、 \tilde{R}_{int} と学習率 $L_{mgffd,R}$ の積をピークとした標準偏差 $\sigma_{mgffd,R}$ のガウス関数標本値ベクトル $D_{mgffd,R}$ を変形量として加えた

$$\hat{R}_{int,mgffd} = \hat{R}_{int} + D_{mgffd,R} = \begin{bmatrix} \hat{R}_{int,1} \\ \hat{R}_{int,2} \\ \vdots \\ \hat{R}_{int,99} \end{bmatrix}^T + \begin{bmatrix} D_{mgffd,R,1} \\ D_{mgffd,R,2} \\ \vdots \\ D_{mgffd,R,99} \end{bmatrix}^T \quad (89)$$

$$\text{ただし } D_{mgffd,R,i} = \tilde{R}_{int} L_{mgffd,R} \exp \left\{ -\frac{(10^{-2}i - S_{oc,ts})^2}{2\sigma_{mgffd,R}^2} \right\}$$

として表現できる。そして \hat{R}_{int} を式(89)で得た標本値ベクトル $\hat{R}_{int,mgffd}$ で更新し、式(90)の評価関数 J_R が最小となるように係数 $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ をフィッティングすることによって $R_{int}(S_{oc})$ を学習する。

$$J_R = \left\| \begin{bmatrix} K_{R,1} \\ K_{R,2} \\ \vdots \\ K_{R,7} \end{bmatrix}^T [M_{R,1}, M_{R,2}, \dots, M_{R,99}] - \hat{R}_{int,mgffd} \right\| \quad (90)$$

本章検討では、本論文末尾の共通条件(2)に記載した条件での定電力充放電サイクル試験のデータに基づき、OCVに対するMGFFDの有効性検証を行った。検証の際の C_{fc} の値は充放電サイクル試験で得られる各サイクルの放電容量を用いた。また各サイクルの R_{int} の値は充放電サイクル試験時系列データと式(48)および式(50)～(53)、図3-2によって $R_{int}(S_{oc,dig})$ として算出し、式(91)の評価関数 $J_{R,c}$ が最小となるように $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ をフィッティングした。

$$J_{R,c} = \left\| \begin{bmatrix} K_{R,1} \\ K_{R,2} \\ \vdots \\ K_{R,7} \end{bmatrix}^T [M_{R,1}, M_{R,2}, \dots, M_{R,99}] - R_{int}(S_{oc,dig}) \right\| \quad (91)$$

この $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ に基づいて式(60)で算出される値を \mathbf{R} の正解値として検証に用いた。

各サイクルにおける OCV の正解値 $V_{oc}(S_{oc,dig})$ は式(49)～(53)および図 3-2 によって充放電時系列データから算出した。そして MGFFD の結果として得られる推定値 $\hat{V}_{oc,mgffd}$ と正解値 $V_{oc}(S_{oc,dig})$ との平均絶対誤差 $V_{oc,mae}$ あるいは平均絶対誤差率 $V_{oc,mae,ratio}$ を指標として学習精度を検証した。これら指標は

$$V_{oc,mae} = \frac{1}{99} \sum_{i=1}^{99} |\hat{V}_{oc,mgffd} - V_{oc}(S_{oc,dig})| \quad (92)$$

$$V_{oc,mae,ratio} = \frac{1}{99} \sum_{i=1}^{99} \left| \frac{\hat{V}_{oc,mgffd} - V_{oc}(S_{oc,dig})}{V_{oc}(S_{oc,dig})} \right| \quad (93)$$

として定義した。学習の検証は MATLAB で実施し、特に式(87)(91)の評価関数の最小値探索は非線形計画法ソルバーである `fminsearch` 関数を用いた。

まず、 $\hat{V}_{oc,mgffd}$ 推定の際の $L_{mgffd,ocv}$ と $\sigma_{mgffd,ocv}$ の組合せ最適条件探索を行った。ここでは初回サイクルの正解値 $V_{oc}(S_{oc,dig})$ から 700 サイクルまで、充電及び放電の時系列データに基づいて逐次的かつ連続的に MGFFD 学習を行って、最終的な $V_{oc,mae}$ を求めた。その結果を図 4-14 に示す。図 4-14 では各 $L_{mgffd,ocv}$ に対する $V_{oc,mae}$ の極小点を赤い丸点で示し、その中の最適条件 ($L_{mgffd,ocv} = 1.000 \times 10^0$, $\sigma_{mgffd,ocv} = 4.000 \times 10^{-3}$) を一回り大きな赤い菱形点で示した。またここで得られた代表的な極小点を表 4.7 にまとめると、概して $1.5 \times 10^{-3} \leq L_{mgffd,ocv}^{0.5} \sigma_{mgffd,ocv} \leq 5.0 \times 10^{-3}$ となる範囲に $V_{oc,mae}$ の極小点が存在する事が示された。ここから、MGFFD 学習の精度が学習 1 回あたりの変形量の大きさである $L_{mgffd,ocv}$ と、変形影響範囲を指定する $\sigma_{mgffd,ocv}$ のバランスによって決まることが示唆された。

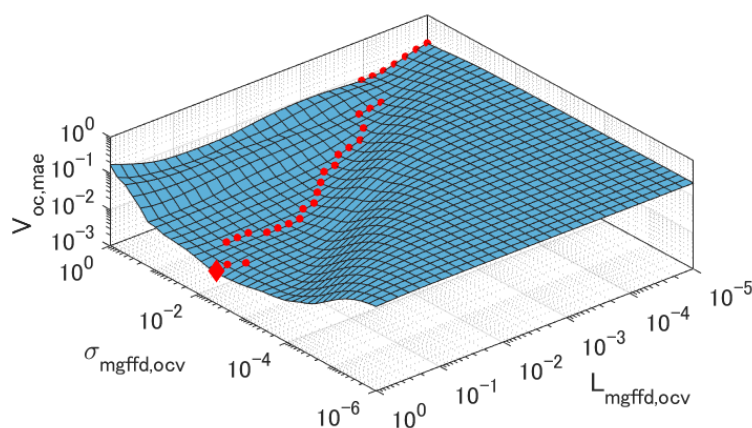


図 4-14 OCV を MGFFD 学習する際の最適な $L_{mgffd,ocv}$ と $\sigma_{mgffd,ocv}$ の組合せの探索結果 [114]

表 4.7 図 4-14 の代表的な $V_{oc,mae}$ の極小点 [114]

条件	$L_{mgffd,ocv}$	$\sigma_{mgffd,ocv}$	$L_{mgffd,ocv}^{0.5}\sigma_{mgffd,ocv}$
1	1.000×10^0	4.000×10^{-3}	4.000×10^{-3}
2	1.374×10^{-1}	1.300×10^{-2}	4.819×10^{-3}
3	1.890×10^{-2}	1.300×10^{-2}	1.787×10^{-3}
4	2.600×10^{-3}	4.250×10^{-2}	2.167×10^{-3}
5	3.562×10^{-4}	2.062×10^{-1}	3.892×10^{-3}

次に MGFFD の学習速度を最適化するため、1 サイクル目の正解値 $V_{oc}(S_{oc,dig})$ に対してあらかじめ+10%のオフセット誤差を与えたものを初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ とし、そこから 700 サイクルまでの充放電サイクルデータで MGFFD 学習させて $V_{oc,mae,ratio}$ を算出した。この MGFFD 学習の条件は図 4-14 で得られた $V_{oc,mae}$ が極小点を得た時の $L_{mgffd,ocv}$ と $\sigma_{mgffd,ocv}$ の組合せとした。各充放電サイクル時点での $V_{oc,mae,ratio}$ の推移を図 4-15 に示す。MGFFD 条件群の中では、より大きな $L_{mgffd,ocv}$ を選択した時に、学習による $V_{oc,mae,ratio}$ の減少速度が速くなった。特に $L_{mgffd,ocv} \geq 10^{-1}$ の条件における結果は良好であり、充放電サイクルの非常に早い段階で $V_{oc,mae,ratio}$ が 10^{-3} 未満に達した。

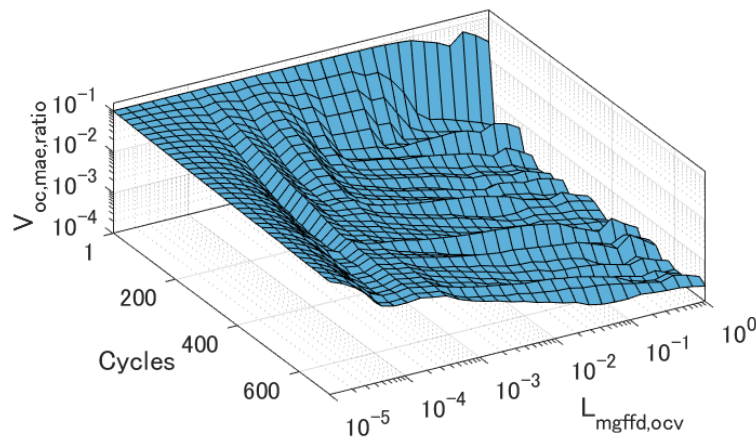


図 4-15 OCV の MGFFD 学習速度と $L_{mgffd,ocv}$ の関係 [114]

続いて、種類や劣化状態が不明で結果として $V_{oc}(S_{oc})$ がわからない場合を想定し、1 サイクル目の正解値 $V_{oc}(S_{oc,dig})$ に対してあらかじめ±10%の範囲でオフセット誤差を与えたものを初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ として MGFFD 学習を行った。ここでの学習条件は図 4-14 の最適条件である表 4.7 の条件 1 とした。この MGFFD 学習の結果を図 4-16 に示す。ごく初期の充放電サイクルでは、あらかじめ与えられたオフセット誤差に応じて $V_{oc,mae,ratio}$ が大きな値を示したが、いずれの条件でも 5 サイクル程度で $V_{oc,mae,ratio}$ はほぼ同等の値まで低減された。すなわち、初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ の±10%程度のオフセット誤差に対する MGFFD 学習は 5 サイクル程度で完了し、以降の充放電サイクルでは図 3-3(a)に示した $V_{oc}(S_{oc})$ の変

化に対する追従的学習に移行したと考えることができる。図 4-16 の結果は、リユースバッテリーのようなその時点の $V_{oc}(S_{oc})$ が不明なリチウムイオン蓄電池に対し、カタログ等に記載された一次利用時の新品特性を初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ として仮設定して MGFFD 学習を実施する事によって、その時点の $V_{oc}(S_{oc})$ を迅速学習できる可能性を示唆する。

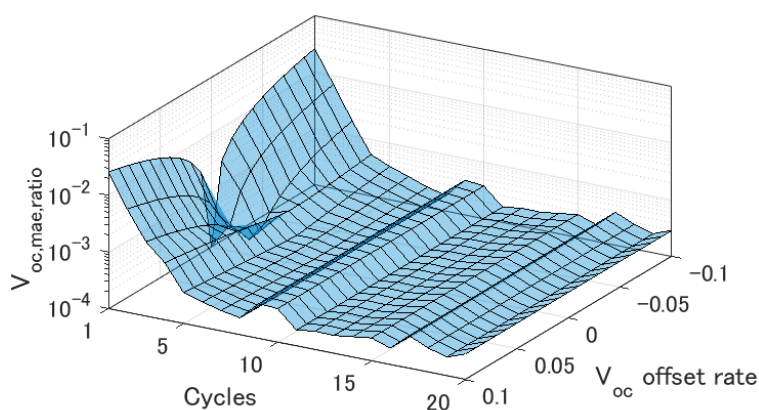


図 4-16 初期 OCV 推定値がオフセット誤差を持つ場合の MGFFD による $V_{oc,mae,ratio}$ 改善 [114]

さらに、カルマンフィルタ等で $R_{int}(S_{oc})$ を推定する際の推定誤差を想定して検討を行った。ここでは時系列データと式(48)および式(50)~(53)および(91)と図 3-2 からフィッティングされた $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ に基づき式(60)で算出される $R_{int}(S_{oc})$ の値に対し、 $\pm 25\%$ までのガウシアンノイズを確率的誤差として与えた。これを $\hat{R}_{int} + \tilde{R}_{int}$ として式(83)に与え、そこから \tilde{V}_{oc} を求めて式(86)の $D_{mgffd,ocv}$ を算出して MGFFD 学習を行った。MGFFD 学習の条件は図 4-14 の最適条件である表 4.7 の条件 1 とした。結果を図 4-17 に示す。 $R_{int}(S_{oc})$ に誤差として加えたガウシアンノイズの大きさが $V_{oc,mae,ratio}$ の増加に寄与したが、最大の $\pm 25\%$ 誤差に対する $V_{oc,mae,ratio}$ が全充放電サイクルを通じて 2×10^{-3} 未満と良好な値を維持

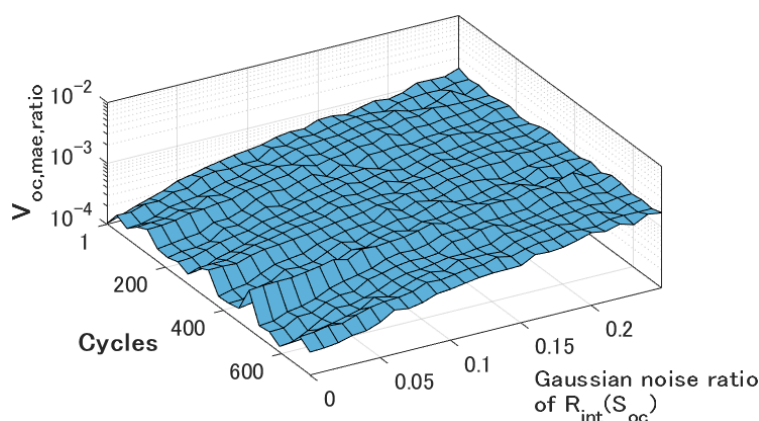


図 4-17 R 推定値に確率的誤差を持たせた場合の MGFFD による $V_{oc,mae,ratio}$ の推移 [114]

した. このことは, カルマンフィルタによる $R_{int}(S_{oc})$ の推定, あるいは BMS による $R_{int}(S_{oc})$ 測定の際に $\pm 25\%$ 程度の誤差が含まれたとしても, MGFFD 学習に致命的な影響がないことを示唆している.

本章検討の最後に, MGFFD による充放電エネルギー E_c および E_d の推定の有効性検証を行った. ここでは MGFFD による $V_{oc}(S_{oc})$ の学習を式(83)~(87)の一連の流れで実施して係数 $K_{ocv,1} \sim K_{ocv,5}$ の値をフィッティングした. また, 時系列データから得られた $R_{int}(S_{oc})$ 正解値に $\pm 25\%$ のガウシアンノイズを確率的誤差として与え, 式(48)および式(50)~(53), 図 3-2 によって $R_{int}(S_{oc,dig})$ とし, 式(91)で $K_{R,1} \sim K_{R,7}$ をフィッティングした. C_{fc} は各サイクルの放電容量とした. これらパラメータと式(41)(42)(55)(60)で各サイクルの E_c および E_d を求め, 実測値と比較した. ここでの MGFFD 学習は表 4.8 に示す条件で実施した. すなわち, 条件 A は図 4-14 で最も $L_{mgffd,ocv}$ の値が大きな高速学習条件であり, 条件 B は $L_{mgffd,ocv}$ の値があまり大きくない低速学習条件である. 条件 C は MGFFD 学習を行わない, $L_{mgffd,ocv} = 0$ の条件である. 各条件共通で, 1 サイクル目の正解値 $V_{oc}(S_{oc,dig})$ に対してあらかじめ $\pm 10\%$ の範囲でオフセット誤差を与えたものを初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ とし, 以降の充放電サイクル時系列データに対する MGFFD 学習を行った. その結果を図 4-18 に示す. まず, MGFFD 学習を実施しない条件 C は, 全てのサイクルを通じて推定値 \hat{E}_c および

表 4.8 OCV の MGFFD 学習による充放電エネルギー推定の学習条件[114]

条件	$L_{mgffd,ocv}$	$\sigma_{mgffd,ocv}$
A (高速 MGFFD)	1.000×10^0	4.000×10^{-3}
B (低速 MGFFD)	3.562×10^{-4}	2.062×10^{-1}
C (MGFFD 学習なし)	0	—

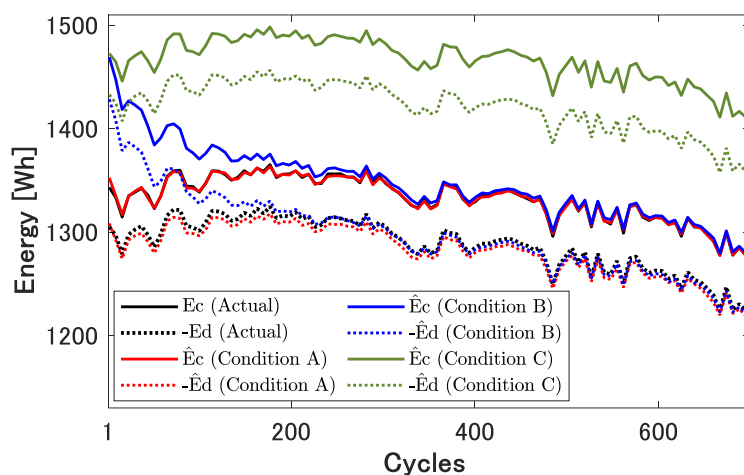


図 4-18 OCV の MGFFD 学習による充放電エネルギーの推定結果 [114]

$-\hat{E}_d$ が実測値 E_c および $-E_d$ から外れた値を示し続けた。一方、低速学習条件である条件 B では、 \hat{E}_c および $-\hat{E}_d$ がサイクル経過とともに徐々に実測値に近づき、約 250 サイクルで初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ のオフセット誤差の学習を完了し、以降は $V_{oc}(S_{oc})$ の経時変化を追従して精度よく \hat{E}_c および $-\hat{E}_d$ を推定したと考えられた。最速学習条件である条件 A では、ごく初期のサイクルで初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ のオフセット誤差の学習を完了し、以降は $V_{oc}(S_{oc})$ の経時変化を追従して精度よく \hat{E}_c および $-\hat{E}_d$ を推定したと考えられた。条件 A において非常に速い段階で初期推定値 $\hat{V}_{oc}(S_{oc})$ のオフセット誤差の学習が完了した事は、図 4-16 および図 4-17 の結果からも容易に推測可能である。本章検討の充放電サイクル末期である 601~700 サイクルで示した条件 A での推定絶対誤差率は、 \hat{E}_c が 0.3%未満、 $-\hat{E}_d$ が 0.7%未満であった。

以上の結果より MGFFD による OCV の学習推定は、カルマンフィルタ等による S_{oc} および R_{int} の推定と、式(7)(54)などによる C_{fc} 推定とを組み合わせることによって、精度のよい \hat{E}_c および $-\hat{E}_d$ の推定手段とすることができ、式(4)による充放電エネルギー効率 η_{cd} の算出につながる。このことはリユースバッテリーをはじめ様々な種類、劣化状態のリチウムイオン蓄電池の充放電エネルギー推定の可能性を示唆している。さらに、これら手法を組み合わせた継続的な学習推定は時系列劣化情報の蓄積に繋がり、そこから蓄電池劣化モデルを生成する事ができると考えられる。従って、多様なリチウムイオン蓄電池が DER として導入されたバッテリーアグリゲーションについて、3.3 節で示したような経済性向上へとつながるであろう。特に、三元系正極、リン酸鉄リチウム正極、チタン酸負極など、リチウムイオン蓄電池の内部材料の違いによって $V_{oc}(S_{oc})$ 曲線が変わる事が知られているが[26]、すべてのリチウムイオン蓄電池における $V_{oc}(S_{oc})$ は連続かつ式(81)の写像が成立していることから、MGFFD が適用可能と考えられる。

他方、 $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ の両方を MGFFD で学習し、 C_{fc} を式(7)で学習的に補正することで、充放電サイクルによる \hat{E}_c および $-\hat{E}_d$ の経時変化を追従的に推定した事例がある[131]。これは MGFFD がより包括的に蓄電池劣化モデル生成に寄与できる可能性を示唆する。ただしサイクル $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ の同時 MGFFD 学習ではそれぞれの学習率である $L_{mgffd,ocv}$ および $L_{mgffd,R}$ と、標準偏差である $\sigma_{mgffd,ocv}$ および $\sigma_{mgffd,R}$ の全ての組み合わせをバランスよく設定しなければ、学習が発散して \hat{E}_c および $-\hat{E}_d$ の推定ができなくなってしまう。 $V_{oc}(S_{oc})$ と $R_{int}(S_{oc})$ の同時 MGFFD 学習における、学習率と標準偏差の組み合わせのシステムチックかつ確実な最適条件探索方法検討は、今後の重要な課題である。

4.4 まとめ

本章では、第 3 章で提案した差電圧を指標とする蓄電池劣化モデル生成法に関し、教師データの課題を提起するとともにより現実のバッテリーアグリゲーションに適した手法を検討した。

検討手法の一つは教師データ量低減のための NN である。FCC, OCV, R に係る蓄電池

劣化モデルを、システムチックにハイパーパラメータ探索された NN によって生成する検討を行った。その結果、OCV に関して NN による教師データ量低減効果が認められたが、FCC および R については効果が認められず、最終的な充放電エネルギー推定の教師データ量低減効果に結びつかなかった。ただし未探索のハイパーパラメータが存在し、また人為的かつ恣意的なハイパーパラメータ設定によって FCC, OCV, R 全てに係る教師データ量低減効果が認められた事例がある。従って、より包括的なハイパーパラメータ探索およびその精度向上が今後の課題である。

もう一つの検討手法は教師データ無し学習のための MGFFD である。FCC および R の蓄電池劣化モデル生成はカルマンフィルタなど他の手法の利用を想定し、ここでは特に OCV の教師データ無し学習と蓄電池劣化モデル生成について検討した。MGFFD は OCV 初期推定値がオフセット誤差を持ち、また R 推定値がノイズ誤差を持っている場合においても、高速かつ精度よく OCV 推定値を補正しその後も経時変化を追従補正できる事を示した。従って MGFFD はバッテリーアグリゲーションに導入される未知のリユースバッテリーを含むリチウムイオン蓄電池の劣化モデル生成を可能にすると考えられる。さらに MGFFD は R の学習推定に適用した事例が報告されている。OCV と R の両方に MGFFD を適用した場合の、それぞれの学習率や標準偏差の設定のシステムチックな調整方法が今後の課題である。

第5章 結論

5.1 本論文の成果の概要

現在地球上で様々な形で発現している気候変動を抑制するため、温室効果ガスである二酸化炭素排出量の低減が求められている。分野別産業別にみると、エネルギー領域の二酸化炭素排出量の割合は多く、特に火力発電等を含む発電領域での脱炭素化の重要性は高い。そのため近年では再生可能エネルギーの導入が急速に進んでおり、特に太陽光発電の導入の勢いが活発である。一方、急速な太陽光発電の導入によってダックカーブなどの太陽光発電の時間帯偏在性に係る現象が顕在化し、実際に日本でも九州エリアを中心に再生可能エネルギー出力制御が発動するようになってきている。

温室効果ガス削減に向けて今後更なる再生可能エネルギー導入を進めていくため、仮想発電所あるいはエネルギー・リソース・アグリゲーションが検討されている。これらに含まれる、定置型蓄電池群の有機的かつ知的な集合体であるバッテリーアグリゲーションは、主にポジワットによって出力制御された太陽光発電電力、すなわち太陽光発電余剰電力を一時的に蓄えることができる。バッテリーアグリゲーションに用いる定置型蓄電池としては、エネルギー密度、充放電効率、充放電レートの点からリチウムイオン蓄電池の利用が期待されている。

一方、リチウムイオン蓄電池には劣化と呼ばれる経時的な性能低下現象が知られている。劣化で低下するリチウムイオン蓄電池の性能の一つに充放電エネルギー効率が挙げられる。電気自動車の市場拡大とリチウム資源量の観点からバッテリーアグリゲーションには劣化したリユースバッテリーの導入が想定され、結果として多様な充放電エネルギー効率をもった定置型蓄電池が混在する事が予想される。この場合、太陽光発電余剰電力をどの蓄電池に充電するかによって充放電エネルギー損失が変わる事となり、このエネルギー損失はバッテリーアグリゲーションの経済性を左右する。様々なリチウムイオン蓄電池の劣化診断が報告されているが、それらは主に容量劣化に注目したものであり、バッテリーアグリゲーションで運用中の個々の蓄電池の充放電エネルギー損失を推定する効率劣化診断はこれまで報告されていなかった。

第2章では鉛蓄電池で知られている *coup de fouet* と呼ばれる挙動を参考とし、満充電電圧および満充電状態から放電した際の放電電圧の差電圧を指標とした効率劣化診断を検討した。ここでは実際のバッテリーアグリゲーション運用との親和性を考慮し、定電力充放電、モジュール、短時間放電での手法として検討を実施した。この検討により差電圧指標から充放電エネルギーをそれぞれ推定可能であることを示した。また差電圧指標とリチウムイオン蓄電池の運用経済性との関係を示すとともに、バッテリーアグリゲーションを模擬したリチウムイオン蓄電池群の選択的充電による運用経済性改善ができることを解明した。一方、第2章の手法には差電圧指標から充放電エネルギーを推定するプロセス、す

なわち蓄電池劣化モデル生成法の中に充放電電流が要素として含まれておらず、画一的な充放電条件しか適用できない、という課題が残されていた。

第3章では第2章で提案した効率劣化診断の蓄電池劣化モデル生成法に、充放電電流の要素を導入して充放電出入力に対する一般化を検討した。ここでは満充電容量、開回路電圧、内部抵抗に係る既報のモデル式を採用するとともに、各モデル式の係数を第2章で用いた差電圧指標のべき乗の一次式で推定する検討を行った。この差電圧指標のべき乗の一次式は、Box-Cox変換による正規化を目的として立式されたものである。また、開回路電圧はモデル式の報告事例が多数あったので、各係数と差電圧指標のべき乗とが最も良好な相関を示すモデル式を採用した。開回路電圧および内部抵抗のモデル式の係数の一部は、充放電サイクルを通じてほぼ値が変わらず差電圧指標のべき乗と相関しなかったため、一定の値となるように定義した。このようにモデル式を推定する蓄電池劣化モデル生成法を構築し、満充電容量、開回路電圧、内部抵抗をそれぞれ算出して、そこから充放電エネルギーを高精度に推定できることを示した。この充放電エネルギー推定においては、差電圧指標を抽出する際の満充電状態からの放電時間を10~280秒に設定すると安定的で良好な推定精度を示した。

さらに、この蓄電池劣化モデルを用いて具体的かつ実用的なバッテリーアグリゲーション経済性改善シミュレーションを実施した。シミュレーションで想定したバッテリーアグリゲーションにはV2G双方向充電器と200台の業務用電気自動車があり、これらが自動車として運用されながら、九州電力エリアで実際に発生した太陽光発電余剰電力を充電し蓄える事とした。また蓄えた余剰電力は卸電力市場で売電されるものとした。ここでは電気自動車に搭載されたリチウムイオン蓄電池の動作を模擬するため、満充電容量、開回路電圧、内部抵抗に係る蓄電池劣化モデルを適用した。既に報告されている容量劣化のモデル式によって満充電容量の経時変化を定義し、これと満充電容量に係る蓄電池劣化モデルを使って差電圧指標を逆算的に推定し、この差電圧指標から開回路電圧と内部抵抗をそれぞれに係る蓄電池劣化モデルから推定した。こうして推定された満充電容量、開回路電圧、内部抵抗によって充放電エネルギーを算出した。太陽光発電余剰電力を電気自動車に充電する際、ランダムに選択して充電した場合と、効率劣化診断によって充放電エネルギー効率を考慮した場合とを比較し、効率劣化診断によるバッテリーアグリゲーションの充放電エネルギー効率および売電収益の改善効果を算出した。これら改善効果はV2G充電器の出力が大きいほど、また蓄電池総容量に対する太陽光発電余剰電力が少ないほど良好な結果を示した。ここでのシミュレーション条件における最大の改善効果は、充放電エネルギー効率が3.4%、収益が8.0%であった。以上のように、効率劣化診断が具体的なバッテリーアグリゲーションモデルにおいてエネルギー効率と収益を向上することを定量的に示した。

第4章では、第3章で提案した蓄電池劣化モデル生成法について扱う教師データの観点から課題を抽出し、現実のバッテリーアグリゲーションに即した手法を検討した。

検討手法の一つはニューラルネットワークであり、蓄電池劣化モデル生成の際に必要な教師データの低減を検討した。ニューラルネットワークの入力データとして放電時の電圧、電流、充電率を採用した。これらの値を抽出するタイミングは第3章提案手法の差電圧指標と同等とした。そして満充電容量、開回路電圧、内部抵抗それぞれに独立したニューラルネットワークを設定し蓄電池劣化モデル生成検討を行った。開回路電圧と内部抵抗はサイクル毎に1つの値ではないので、SOCを50区分してそれぞれに対応する出力ノードを設定した。入力と出力のバッチ数は3とし、近接する3サイクル分のノードを設定して値を入出力した。さらに、隠れ層の活性化関数として、ニューラルネットワークに汎用されるsigmoid関数や $y = \tanh x$ のほか、 $y = x^2$ を検討した。いくつかのハイパーパラメータをシステムチックに最適化し検討した結果、開回路電圧の推定に関して教師データ量の低減効果が認められた一方、満充電容量および内部抵抗については顕著な効果が認められず、結果として最終的な充放電エネルギー推定における教師データ量低減が達成されなかった。ただし、システムチックな最適化が未検討のハイパーパラメータがまだ存在しており、また人為的かつ恣意的なハイパーパラメータ探索によって満充電容量、開回路電圧、内部抵抗の教師データ量低減効果が得られた事例がある。今後はさらなるハイパーパラメータの最適化検討を進める予定である。

もう一つの検討手法は、画像処理法として知られるGFFDと呼ばれる手法を、特にリチウムイオン蓄電池の開回路電圧推定に適用できるよう修正したMGFFDである。ここでは教師無しでの蓄電池劣化モデル生成を検討した。バッテリーアグリゲーションで運用されるリチウムイオン蓄電池のバッテリーマネジメントシステムからは電圧・電流の計測値が得られる。これらをもとに、充電率や内部抵抗はカルマンフィルタで、満充電容量は2つの時点の累積充放電電気量を充電率差で除すことによって、それぞれ推定する事ができる。しかし開回路電圧の推定は困難であった。MGFFDは開回路電圧の事前予測値を持ち、そこから推定される充放電電圧推定値と実際の充放電電圧との誤差をもとに、事前予測値のガウス関数加算による切れ目なく滑らかな学習を行う。このMGFFD学習によって、未知のリチウムイオン蓄電池の開回路電圧推定を精度よく実施できる事を示した。また、カルマンフィルタによる充電率や内部抵抗の推定、および充電率差による満充電容量推定が可能である。これら推定を継続的に実施する事によって各パラメータに係る蓄電池劣化モデルを生成でき、充放電エネルギーを精度よく推定できる。以上よりMGFFDは、バッテリーアグリゲーションに導入された未知のリユースバッテリーを含むリチウムイオン蓄電池の効率劣化診断を可能にする事が示された。なおMGFFDは内部抵抗の学習に用いる事も可能である。実際にMGFFDによる開回路電圧および内部抵抗の推定と、充電率差による満充電容量推定とを組合せて充放電曲線を経時的かつ追従的に推定した事例がある。開回路電圧および内部抵抗を同時にMGFFD学習する際の、学習率および標準偏差のシステムチックな調整方法は今後の課題である。

5.2 本論文の成果の要点

本論文の成果は、

- ① リチウムイオン蓄電池の劣化による経時的充放電エネルギー効率低下に注目し、その診断方法すなわち効率劣化診断を提案するとともに、そのバッテリーアグリゲーション運用経済性改善効果を解明したこと
- ② 充放電電流を要素に持つ実用的な蓄電池劣化モデル生成法を提案し、これに基づいて具体的なバッテリーアグリゲーションモデルの運用経済性改善効果を定量的に提示したこと
- ③ 現実のバッテリーアグリゲーションを想定して蓄電池劣化モデル生成法の教師データの課題に注目し、教師データ量を低減する手法と、教師無し手法とを提案したこと

の3点に要約される。本論文の成果は、バッテリーアグリゲーションの運用経済性向上を通じて再生可能エネルギーの更なる導入拡大を促し、気候変動対策の一助になると考えられる。

5.3 今後の発展性

本論文の第3章および第4章で検討した各種蓄電池劣化モデル生成法は、独立して用いるものではなくそれぞれの特性を活かして協調的に活用するものであると考えられる。すなわち、バッテリーアグリゲーションに含まれるリチウムイオン蓄電池の運用時系列データがバッテリーマネジメントで計測されたら、まずMGFFDによって開回路電圧と内部抵抗の情報を学習的に取得する。このとき必要に応じてカルマンフィルタや充電率差も利用し、満充電容量の値についても取得しておく。リチウムイオン蓄電池を充放電運用しながらMGFFDを一定期間継続的に実施すると、充放電サイクル試験を実施したのと同等のデータが蓄積される。当然この期間は短いほど利便性は高い。ニューラルネットワークは、教師データを低減できる可能性のある手法であった。これはニューラルネットワークの汎化能力すなわち未知のデータに対する対応能力と言える。つまり、MGFFDや充電率差から得た一定期間の満充電容量、開回路電圧、内部抵抗のデータセットをニューラルネットワークが学習する事によって、少し未来へとデータセットを増幅できる可能性が示唆される。このときニューラルネットワークの入力ノードに導入する未来の予測値は、一定期間運用時のデータセットのトレンドから外挿的に得られるであろう。このようにして得た増幅データセットは、3.2節で提案した差電圧指標による蓄電池劣化モデル生成法の教師データ量に係る課題を克服し、適切なモデル式係数を導き出すと考えられる。このモデル式係数によってリチウムイオン蓄電池の充放電曲線に係る情報はいくつかの要素を持つベクトルに圧縮される。従ってエッジ側のリチウムイオン蓄電池バッテリーマネジメントシステムから効率的にバッテリーアグリゲーションのクラウドマネジメントシステムへと情報を送る事ができる。そしてバッテリーアグリゲーションのクラウドマネジメントシステム

は、各リチウムイオン蓄電池に紐づけられたベクトルによって、それぞれの充放電エネルギー効率を推定し、3.3 節で示したように全体の経済性を向上させることができる。以上が、効率劣化診断によるバッテリーアグリゲーションの経済性向上の完成形の候補の一つと考えている。一つ一つの蓄電池劣化モデル生成法を繋ぎ合わせる過程では、予期するしないに関わらず様々な不都合、不具合が発生する事が予想される。この擦り合わせを適切な形にすべく、引き続きさらなる効率劣化診断の発展に取り組んでいきたいと考える。

今後リチウムイオン蓄電池の市場が電気自動車の発展とともに更に拡大し、一方で定置型蓄電池ではリユースバッテリーの利活用が進むことが予想される。また気候変動抑制のため、現在よりもはるかに多くの再生可能エネルギーを導入する必要に迫られている。このような状況の中で、バッテリーアグリゲーションは真のエコ、すなわちエコロジーとエコノミーを両立する必要がある、リチウムイオン蓄電池の効率劣化診断がその両立の役に立つことを心より願っている。

記号および略号

※充放電に係る電流・電力の値は、特に断りがない限り、充電を正、放電を負の値とする。

$A_{c,j}$: 充電電圧標本値ベクトルの j 番目の要素の 1 次の項の係数

$A_{d,j}$: 放電電圧標本値ベクトルの j 番目の要素の 1 次の項の係数

A_{hid} : NN の隠れ層の活性化ベクトル

A_i : FCC 減少率調整項

$B_{c,j}$: 充電電圧標本値ベクトルの j 番目の要素の 0 次の項の係数

$B_{d,j}$: 放電電圧標本値ベクトルの j 番目の要素の 0 次の項の係数

$B_{gffd,i}$: GFFD 変形での i 番目の制御点 $V_{cont,i}$ に対応した曲線の基底関数

BMS: Battery Management System

BOL: Beginning of Life

$C(\text{シー})$: 充放電レート

$c_1 \sim c_{165}$: 任意の定数

C_{eq} : Randles 型等価回路のある RC 並列回路のキャパシタンス

C_{fc} : その時の FCC

$C_{fc,BOL}$: BOL の時の FCC

$C_{fc,EOL}$: EOL の時の FCC

C_{mgffd} : MGFFD 変形の中心座標の第一要素の値

CPE: Constant Phase Element

DER: Distributed Energy Resource

D_{mgffd} : MGFFD の変形量

$D_{mgffd,ocv}$: OCV の MGFFD 学習に係る変形量

D_t : 差電圧指標抽出時の放電時間

E_c : 充放電サイクル 1 回あたりの充電エネルギー [Wh]

E_d : 充放電サイクル 1 回あたりの放電エネルギー [Wh]

EKF: Extended Kalman Filter

E_{mf} : リチウムイオン蓄電池の起電力

EOL: End of Life

FCC: Full Charge Capacity

ΔF_{grid} : 電力ネットワーク周波数乖離

F_{os} : MGFFD 変形前のモデル図形の座標群ベクトル

f_{RC} : Randles 型等価回路のある RC 並列回路に印加した交流波の周波数

FIT: Feed in Tariff

G_{cycle} : 充放電サイクル 1 回分の電池容量[kWh]あたり経済メリット[円/kWh]
 $G_{cycle,BOL}$: BOL の時の充放電サイクル 1 回分の電池容量[kWh]あたり経済メリット
 $G_{cycle,EOL}$: EOL の時の充放電サイクル 1 回分の電池容量[kWh]あたり経済メリット
GFFD: Gaussian free form deformation
 H_{jp} : ジュール熱と分極発熱の合計発熱[J/s]
 I_c : 充電電流[A]
 $I_{c,d}$: 充放電電流[A]
 I_d : 放電電流[A]
 I_{NN} : NN の入力層へ導入する一組の入力バッチデータの値
 $I_{NN,i}$: NN の入力層の i 番目のノードに対する入力値
IEC: International Electrotechnical Commission
IPCC: International Panel on Climate Change
JIS: 日本産業規格 (Japanese Industrial Standards)
 K_d : 時間当たり FCC 減少率[$10^{-5}days^{-1}$]
 K_{grid} : 電力ネットワークの特性を表す定数
 $K_{ocv,n_{ocv}}$: OCV のモデル式の係数
 K_{R,n_R} : R のモデル式の係数
 L_{cd} : 充放電エネルギー損失[Wh]
 L_{IN} : W_{IN} に係る学習率
 $L_{mgffd,ocv}$: OCV の MGFFD 学習に係る学習率
 $L_{mgffd,R}$: R の MGFFD 学習に係る学習率
 L_{OUT} : W_{OUT} に係る学習率
Ma: 負極活物質
Mc: 正極活物質
 $M_{ocv,i}$: OCV モデル式の, 標本値ベクトル $S_{oc,dig}$ の i 番目要素に係る項
 $M_{R,i}$: R モデル式の, 標本値ベクトル $S_{oc,dig}$ の i 番目要素に係る項
MGFFD: Modified GFFD
 n_{cont} : モデル図形上の制御点の個数
 n_{dig} : 標本値ベクトルの要素数
 n_{hid} : NN の隠れ層ノードの数
 n_{in} : NN の入力層ノードの数
 n_{ocv} : OCV のモデル式の係数の通し番号
 n_{out} : NN の出力層ノードの数
 n_R : R のモデル式の係数の通し番号
NN: Neural Network
OCV: Open Circuit Voltage

O_{NN} : NN の出力層からの出力値
 $O_{NN,i}$: NN の出力層の i 番目のノードに対する入力値
 P_{cycle} : 充放電サイクルの定電力値
 P_{gffd} : GFFD によって変形されたモデル図形の座標群ベクトル
 P_{ih} : NN の隠れ層における, 入力層側からの順伝播
 $P_{ih,i}$: NN の i 番目の隠れ層における, 入力層側からの順伝播
 P_{oh} : NN の隠れ層における, 出力層側からの逆伝播
 $P_{oh,i}$: NN の i 番目の隠れ層における, 出力層側からの逆伝播
 Q_c : 完全放電状態からの充電電流量
 $Q_{c,dig}$: 完全放電状態からの充電電流量の標本値ベクトル
 $Q_{c,j}$: $Q_{c,dig}$ の j 番目の要素
 Q_d : 満充電状態からの放電電流量
 $Q_{d,dig}$: 満充電状態からの放電電流量の標本値ベクトル
 $Q_{d,n_{dig}+1-j}$: $Q_{d,dig}$ の $n_{dig} + 1 - j$ 番目の要素
 Q_{ts} : 各充放電サイクル時系列データにおける完全放電状態からの累積充放電電流量
R: Resistance
ReLU: Rectified linear unit)
 R_{eq} : 電気抵抗と分極抵抗の合計抵抗[Ω]
 R_{int} : リチウムイオン蓄電池の直流内部抵抗[Ω]
 $\hat{R}_{int,mgffd}$: \hat{R}_{int} を MGFFD で学習した後の補正值
 r_p : 相関係数
 S_{2d} : 二次元モデル図形が展開され得る平面上の座標ベクトル第一成分の全集合
SEI: Solid Electrolyte Interface
 S_{gffd} : GFFD 変形後のモデル図形の座標群ベクトルの第一要素
 $S_{gffd,i}$: GFFD 変形後の i 番目の制御点の座標の第一要素
 S_{mgffd} : MGFFD 変形前のモデル図形の座標群ベクトルの第一要素
SOC: State of Charge
 S_{oc} : 0~1 の範囲にある SOC の値
 $S_{oc,dig}$: SOC の標本値ベクトル
 $S_{oc,ts}$: 扱った単一の時系列データにおける SOC の値
SOEc: State of Economy
 S_{OEc} : 0~1 の範囲にある SOEc の値
 T_{gffd} : GFFD 変形後のモデル図形の座標群ベクトルの第二要素
 $T_{gffd,i}$: GFFD 変形後の i 番目の制御点の座標の第二要素
 T_{high} : 時間帯別に 2 段階設定された電力料金体系における高い方の電力単価[円/kWh]
 T_{low} : 時間帯別に 2 段階設定された電力料金体系における安い方の電力単価[円/kWh]

T_{mgffd} : MGFFD 変形前のモデル図形の座標群ベクトルの第二要素
 T_{NN} : NN の教師データである一組の理想出力バッチデータ
 T_r : 小売電力量料金単価[円/Wh]
 UKF: Unscented Kalman Filter
 V2G: Vehicle to Grid
 $V_{c,max}$: 満充電時電圧
 V_c : 充電電圧[V]
 $V_{c,d}$: 充放電電圧[V]
 $V_{c,dig}$: $Q_{c,dig}$ に対応する充電電圧標本値ベクトル
 $V_{c,j}$: $V_{c,dig}$ のj番目の要素
 $V_{cont,i}$: モデル図形上のi番目の制御点の座標ベクトル
 V_d : 放電電圧[V]
 $V_{d,dig}$: $Q_{d,dig}$ に対応する放電電圧標本値ベクトル
 $V_{d,j}$: $V_{d,dig}$ のj番目の要素
 V_{diff,D_t} : 満充電状態から一定出力で D_t 秒放電した時の差電圧指標
 $V_{diff,D_t,EOL}$: EOL 時に満充電状態から一定出力で D_t 秒放電した時の差電圧指標
 V_{dsam,D_t} : V_{diff,D_t} を算出する際にサンプリングされる放電電圧
 V_{mgffd} : MGFFD 変形の操作点座標
 V_{oc} : 開回路電圧 OCV の値
 $V_{oc,mae}$: OCV 推定値の平均絶対誤差
 $V_{oc,mae,ratio}$: OCV 推定値の平均絶対誤差率
 $\hat{V}_{oc,mgffd}$: \hat{V}_{oc} を MGFFD で学習した後の補正值
 VPP: Virtual Power Plant
 $W_{gffd,i}$: GFFD 変形でのi番目の制御点 $V_{cont,i}$ に対応した重み
 W_{IN} : 入力層側ノード結合重み
 $W_{IN,i,j}$: i番目の入力層ノードとj番目の隠れ層ノードとのノード結合の重み
 W_{mgffd} : MGFFD 変形の重み
 W_{OUT} : 出力層側ノード結合重み
 $W_{OUT,i,j}$: i番目の入力層ノードとj番目の隠れ層ノードとのノード結合の重み
 $W_{OUT,upd}$: W_{OUT} の更新値
 X_{gffd} : GFFD のモデル図形の X 座標ベクトル
 Y_{gffd} : GFFD のモデル図形の Y 座標ベクトル
 Z_{eq} : リチウムイオン蓄電池の内部インピーダンス
 Z_w : ワールブルグインピーダンス
 ΔE_{gen} : 発電量の需給一致時からの乖離
 ΔE_{load} : 電力需要の需給一致時からの乖離

ΔF_{grid} : 電力ネットワーク周波数の需給一致時からの乖離
 ΔO_{NN} : 教師データと実際の NN の出力値の誤差
 ΔQ_{ts} : 2 点の充放電時系列データ間における累積充放電電気量
 $\Delta S_{oc,ts}$: 2 点の充放電時系列データ間における SOC の差
 τ_{RC} : Randles 型等価回路のある RC 並列回路の時間定数
 η_{cd} : 充放電エネルギー効率[Wh/Wh]
 $\sigma_{gffd,i}$: GFFD 変形での i 番目の制御点 $V_{cont,i}$ に対応した標準偏差
 $\sigma_{mgffd,ocv}$: OCV の MGFFD 学習に係る標準偏差
 $\sigma_{mgffd,R}$: R の MGFFD 学習に係る標準偏差

共通条件

- (1) 特に断りがない限り，数式計算における充放電電流($I_{c,d}$)・充放電電力・充放電電流量(Q_{ts})・充放電エネルギー(E_c, E_d)の値は，充電を正，放電を負と定義する。
- (2) リチウムイオン蓄電池モジュールの充放電サイクル試験は下記の条件で実施した。
 - ①モジュールの仕様
8直列1並列，定格電圧 29.6 V，定格容量 50 Ah (1.48 kWh)
 - ②モジュールを構成する単電池の電極材料
正極活物質：ニッケル，コバルト，マンガンを含む層状化合物
負極活物質：カーボン
 - ④ 充放電サイクルの条件
方式と出入力：定電力方式 (SOC が 0→1→0→1…)，1085 W
電圧範囲：単電池基準で 2.70～4.15 V (これを $0 \leq \text{SOC} \leq 1$ とする)
モジュール温度：室温付近 (各温度計測点において概ね 15～30℃の範囲)
充電と放電のインターバル：1.5 h
サイクル数：750 サイクル
 - ④データサンプリングの条件
電圧分解能：1 mV
電流分解能：1 mA
時間分解能：1 s

参考文献

- [1] IPCC, “Global Warming of 1.5 °C -Chapter 1. Framing and Context-,” 2018.
<https://www.ipcc.ch/sr15/chapter/chapter-1/> (accessed Sep. 30, 2020).
- [2] IPCC, “IPCC第5次評価報告書 第一作業部会報告書 政策決定者向け要約,” 2013.
https://www.data.jma.go.jp/cpdinfo/ipcc/ar5/ipcc_ar5_wg1_spm_jpn.pdf (accessed Sep. 30, 2020).
- [3] 国立環境研究所, “温室効果ガスインベントリ.” <http://www-gio.nies.go.jp/aboutghg/nir/nir-j.html> (accessed Sep. 30, 2020).
- [4] 気象庁, “二酸化炭素の経年変化.”
https://ds.data.jma.go.jp/ghg/kanshi/ghgp/co2_trend.html (accessed Oct. 11, 2020).
- [5] 一般財団法人新エネルギー財団, “新エネルギーとは.” <https://www.nef.or.jp/pamphlet/> (accessed Oct. 11, 2020).
- [6] IRENA, “Renewable Capacity Statistics 2020,” 2020.
<https://www.irena.org/publications/2020/Jul/Renewable-energy-statistics-2020> (accessed Oct. 12, 2020).
- [7] California ISO, “What the duck curve tells us about managing a green grid,” 2013.
https://www.caiso.com/Documents/FlexibleResourcesHelpRenewables_FastFacts.pdf (accessed Oct. 12, 2020).
- [8] 九州電力送配電, “エリア需給実績.”
https://www.kyuden.co.jp/td_service_wheeling_rule-document_disclosure (accessed Oct. 12, 2020).
- [9] 荻本和彦, 林泰弘, 蘆立修一, “太陽光発電出力制御の高度化技術,” 電気学会誌, vol. 138, no. 12, pp. 803–806, Dec. 2018, doi: 10.1541/ieejjournal.138.803.
- [10] 経済産業省資源エネルギー庁, “エネルギー白書2017 第2部 エネルギー動向／第1章 国内エネルギー動向／第4節 二次エネルギーの動向,” 2018.
<https://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/2017html/2-1-4.html> (accessed Oct. 12, 2020).
- [11] 伊賀淳, 石原好之, 堀内紀充, 山口利幸, “「月別温度係数」の提案と太陽光発電システムの発電量評価方法,” 電気学会論文誌B, vol. 125, no. 6, pp. 610–618, 2005, doi: 10.1541/ieejpes.125.610.
- [12] D. Pudjianto, C. Ramsay, and G. Strbac, “Virtual power plant and system integration of distributed energy resources,” *IET Renew. Power Gener.*, vol. 1, no. 1, p. 10, 2007, doi: 10.1049/iet-rpg:20060023.
- [13] 石井英雄, “エネルギー・リソース・アグリゲーション・ビジネス (ERAB) の取り組み,” エネルギー・資源, vol. 40, no. 6, pp. 17–21, 2019.

- [14] スマートグリッド編集委員会, スマートコミュニティのためのエネルギーマネジメント. 大河出版, 2016.
- [15] E. Isono, Y. Ebata, T. Isogai, and H. Hayashi, “Development of battery aggregation technology for smart grid,” in *2013 IEEE Grenoble Conference*, Jun. 2013, pp. 1–6, doi: 10.1109/PTC.2013.6652141.
- [16] 電気学会電気規格調査会テクニカルレポート, “JEC-TR-59002:2018 蓄電池システムによるエネルギーサービスに関する標準仕様,” 2018.
- [17] K. Mizushima, P. C. Jones, P. J. Wiseman, and J. B. Goodenough, “ Li_xCoO_2 ($0 < x < 1$): A new cathode material for batteries of high energy density,” *Mater. Res. Bull.*, vol. 15, no. 6, pp. 783–789, Jun. 1980, doi: 10.1016/0025-5408(80)90012-4.
- [18] 吉野彰, 実近健一, “二次電池,” 特開昭58-233649.
- [19] M. S. Whittingham, “Electrical Energy Storage and Intercalation Chemistry,” *Science*, vol. 192, no. 4244, pp. 1126–1127, Jun. 1976, doi: 10.1126/science.192.4244.1126.
- [20] A. K. Padhi, K. S. Nanjundaswamy, and J. B. Goodenough, “Phospho - olivines as Positive - Electrode Materials for Rechargeable Lithium Batteries,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 144, no. 4, pp. 1188–1194, Apr. 1997, doi: 10.1149/1.1837571.
- [21] M. M. Thackeray, W. I. F. David, P. G. Bruce, and J. B. Goodenough, “Lithium insertion into manganese spinels,” *Mater. Res. Bull.*, vol. 18, no. 4, pp. 461–472, Apr. 1983, doi: 10.1016/0025-5408(83)90138-1.
- [22] K. M. Colbow, J. R. Dahn, and R. R. Haering, “Structure and electrochemistry of the spinel oxides LiTi_2O_4 and $\text{Li}_{43}\text{Ti}_{53}\text{O}_4$,” *J. Power Sources*, vol. 26, no. 3–4, pp. 397–402, May 1989, doi: 10.1016/0378-7753(89)80152-1.
- [23] A. M. Wilson and J. R. Dahn, “Lithium Insertion in Carbons Containing Nanodispersed Silicon,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 142, no. 2, pp. 326–332, Feb. 1995, doi: 10.1149/1.2043994.
- [24] P. Ramadass, B. Haran, R. White, and B. N. Popov, “Capacity fade of Sony 18650 cells cycled at elevated temperatures,” *J. Power Sources*, vol. 112, no. 2, pp. 606–613, Nov. 2002, doi: 10.1016/S0378-7753(02)00474-3.
- [25] J. Schmitt, A. Maheshwari, M. Heck, S. Lux, and M. Vetter, “Impedance change and capacity fade of lithium nickel manganese cobalt oxide-based batteries during calendar aging,” *J. Power Sources*, vol. 353, pp. 183–194, Jun. 2017, doi: 10.1016/j.jpowsour.2017.03.090.
- [26] A. Farmann and D. U. Sauer, “A study on the dependency of the open-circuit voltage on temperature and actual aging state of lithium-ion batteries,” *J. Power Sources*, vol. 347, pp. 1–13, Apr. 2017, doi: 10.1016/j.jpowsour.2017.01.098.

- [27] S. Watanabe, M. Kinoshita, and K. Nakura, "Capacity fade of $\text{LiNi}_{(1-x-y)}\text{Co}_x\text{Al}_y\text{O}_2$ cathode for lithium-ion batteries during accelerated calendar and cycle life test. I. Comparison analysis between $\text{LiNi}_{(1-x-y)}\text{Co}_x\text{Al}_y\text{O}_2$ and LiCoO_2 cathodes in cylindrical lithium-ion cells during long term," *J. Power Sources*, vol. 247, pp. 412–422, Feb. 2014, doi: 10.1016/j.jpowsour.2013.08.079.
- [28] T. Hayashi, J. Okada, E. Toda, R. Kuzuo, N. Oshimura, N. Kuwata, and J. Kawamura, "Degradation Mechanism of $\text{LiNi}_{0.82}\text{Co}_{0.15}\text{Al}_{0.03}\text{O}_2$ Positive Electrodes of a Lithium-Ion Battery by a Long-Term Cycling Test," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 161, no. 6, pp. A1007–A1011, May 2014, doi: 10.1149/2.056406jes.
- [29] T. Sasaki, T. Nonaka, H. Oka, C. Okuda, Y. Itou, Y. Kondo, Y. Takeuchi, Y. Ukyo, K. Tatsumi, and S. Muto, "Capacity-Fading Mechanisms of LiNiO_2 -Based Lithium-Ion Batteries," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 156, no. 4, p. A289, 2009, doi: 10.1149/1.3076136.
- [30] S. Bhattacharya, A. R. Riahi, and A. T. Alpas, "A transmission electron microscopy study of crack formation and propagation in electrochemically cycled graphite electrode in lithium-ion cells," *J. Power Sources*, vol. 196, no. 20, pp. 8719–8727, Oct. 2011, doi: 10.1016/j.jpowsour.2011.05.079.
- [31] E. Peled and S. Menkin, "Review—SEI: Past, Present and Future," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 164, no. 7, pp. A1703–A1719, Jun. 2017, doi: 10.1149/2.1441707jes.
- [32] G. Liu, H. Zheng, X. Song, and V. S. Battaglia, "Particles and Polymer Binder Interaction: A Controlling Factor in Lithium-Ion Electrode Performance," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 159, no. 3, pp. A214–A221, Jan. 2012, doi: 10.1149/2.024203jes.
- [33] C.-F. Chen, P. Barai, and P. P. Mukherjee, "Diffusion Induced Damage and Impedance Response in Lithium-Ion Battery Electrodes," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 161, no. 14, pp. A2138–A2152, Oct. 2014, doi: 10.1149/2.0651414jes.
- [34] I. Bloom, A. N. Jansen, D. P. Abraham, J. Knuth, S. A. Jones, V. S. Battaglia, and G. L. Henriksen, "Differential voltage analyses of high-power, lithium-ion cells," *J. Power Sources*, vol. 139, no. 1–2, pp. 295–303, Jan. 2005, doi: 10.1016/j.jpowsour.2004.07.021.
- [35] K. Honkura and T. Horiba, "Study of the deterioration mechanism of LiCoO_2 /graphite cells in charge/discharge cycles using the discharge curve analysis," *J. Power Sources*, vol. 264, pp. 140–146, Oct. 2014, doi: 10.1016/j.jpowsour.2014.04.036.
- [36] P. Ramadass, B. Haran, P. M. Gomadam, R. White, and B. N. Popov, "Development of First Principles Capacity Fade Model for Li-Ion Cells," *J. Electrochem. Soc.*, vol.

- 151, no. 2, p. A196, 2004, doi: 10.1149/1.1634273.
- [37] M. Ecker, N. Nieto, S. Käbitz, J. Schmalstieg, H. Blanke, A. Warnecke, and D. U. Sauer, “Calendar and cycle life study of Li(NiMnCo)O₂-based 18650 lithium-ion batteries,” *J. Power Sources*, vol. 248, pp. 839–851, Feb. 2014, doi: 10.1016/j.jpowsour.2013.09.143.
- [38] S. Leroy, H. Martinez, R. Dedryvère, D. Lemordant, and D. Gonbeau, “Influence of the lithium salt nature over the surface film formation on a graphite electrode in Li-ion batteries: An XPS study,” *Appl. Surf. Sci.*, vol. 253, no. 11, pp. 4895–4905, Mar. 2007, doi: 10.1016/j.apsusc.2006.10.071.
- [39] J. R. Dahn, “Phase diagram of Li_xC₆,” *Phys. Rev. B*, vol. 44, no. 17, pp. 9170–9177, Nov. 1991, doi: 10.1103/PhysRevB.44.9170.
- [40] A. Farmann and D. U. Sauer, “A comprehensive review of on-board State-of-Available-Power prediction techniques for lithium-ion batteries in electric vehicles,” *J. Power Sources*, vol. 329, pp. 123–137, Oct. 2016, doi: 10.1016/j.jpowsour.2016.08.031.
- [41] E. Redondo-Iglesias, P. Venet, and S. Pelissier, “Efficiency Degradation Model of Lithium-Ion Batteries for Electric Vehicles,” *IEEE Trans. Ind. Appl.*, vol. 55, no. 2, pp. 1932–1940, Mar. 2019, doi: 10.1109/TIA.2018.2877166.
- [42] N. Sato, “Thermal behavior analysis of lithium-ion batteries for electric and hybrid vehicles,” *J. Power Sources*, vol. 99, no. 1–2, pp. 70–77, Aug. 2001, doi: 10.1016/S0378-7753(01)00478-5.
- [43] M. Zeraati, M. E. Hamedani Golshan, and J. M. Guerrero, “Distributed Control of Battery Energy Storage Systems for Voltage Regulation in Distribution Networks With High PV Penetration,” *IEEE Trans. Smart Grid*, vol. 9, no. 4, pp. 3582–3593, Jul. 2018, doi: 10.1109/TSG.2016.2636217.
- [44] 日本自動車工業会, “四輪車世界生産台数(2019年).” <http://www.jama.or.jp/world/world/index.html> (accessed Oct. 19, 2020).
- [45] L. Ahmadi, S. B. Young, M. Fowler, R. A. Fraser, and M. A. Achachlouei, “A cascaded life cycle: reuse of electric vehicle lithium-ion battery packs in energy storage systems,” *Int. J. Life Cycle Assess.*, vol. 22, no. 1, pp. 111–124, Jan. 2017, doi: 10.1007/s11367-015-0959-7.
- [46] 石油天然ガス・金属鉱物資源機構, “鉱物資源マテリアルフロー2019.” http://mric.jogmec.go.jp/wp-content/uploads/2020/05/material_flow2019.pdf (accessed Oct. 19, 2020).
- [47] 経済産業省電動車活用社会推進協議会事務局, “電動車活用社会推進協議会 車載用電池リユース促進WG の設置趣旨について.” <http://www.cev->

- pc.or.jp/xev_kyougikai/xev_pdf/xev_kyougikai_wg02-1_about_WG.pdf (accessed Oct. 22, 2020).
- [48] 大和製罐株式会社, “蓄電池劣化診断・経済性評価.” <https://www.daiwa-cans.com/solution/diagnosis.html> (accessed Nov. 14, 2020).
- [49] 佐藤登, 平尾浩一, 林栄治, 片桐元, “リチウムイオン電池の劣化過程における電極のキャラクター化,” 日本化学会誌, no. 2, pp. 189–194, 2002, doi: 10.1246/nikkashi.2002.189.
- [50] T. Waldmann, A. Iturrondobeitia, M. Kasper, N. Ghanbari, F. Aguesse, E. Bekaert, L. Daniel, S. Genies, I. J. Gordon, and M. W. Löble, “Review—Post-Mortem Analysis of Aged Lithium-Ion Batteries: Disassembly Methodology and Physico-Chemical Analysis Techniques,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 163, no. 10, pp. A2149–A2164, Aug. 2016, doi: 10.1149/2.1211609jes.
- [51] D. Zhang, B. S. Haran, A. Durairajan, R. E. White, Y. Podrazhansky, and B. N. Popov, “Studies on capacity fade of lithium-ion batteries,” *J. Power Sources*, vol. 91, no. 2, pp. 122–129, Dec. 2000, doi: 10.1016/S0378-7753(00)00469-9.
- [52] G. Nagasubramanian, “Two- and three-electrode impedance studies on 18650 Li-ion cells,” *J. Power Sources*, vol. 87, no. 1–2, pp. 226–229, Apr. 2000, doi: 10.1016/S0378-7753(99)00469-3.
- [53] J. Li, E. Murphy, J. Winnick, and P. A. Kohl, “Studies on the cycle life of commercial lithium ion batteries during rapid charge–discharge cycling,” *J. Power Sources*, vol. 102, no. 1–2, pp. 294–301, Dec. 2001, doi: 10.1016/S0378-7753(01)00821-7.
- [54] B. Yannliaw, “Modeling of lithium ion cells-A simple equivalent-circuit model approach,” *Solid State Ionics*, vol. 175, no. 1–4, pp. 835–839, Nov. 2004, doi: 10.1016/j.ssi.2004.09.049.
- [55] T. Osaka, T. Momma, D. Mukoyama, and H. Nara, “Proposal of novel equivalent circuit for electrochemical impedance analysis of commercially available lithium ion battery,” *J. Power Sources*, vol. 205, pp. 483–486, May 2012, doi: 10.1016/j.jpowsour.2012.01.070.
- [56] 安部武志, 小久見善八, “リチウムイオン電池における界面電荷移動反応,” 表面科学, vol. 27, no. 10, pp. 609–612, 2006, doi: 10.1380/jsssj.27.609.
- [57] J. Huang, “Diffusion impedance of electroactive materials, electrolytic solutions and porous electrodes: Warburg impedance and beyond,” *Electrochim. Acta*, vol. 281, pp. 170–188, Aug. 2018, doi: 10.1016/j.electacta.2018.05.136.
- [58] M. R. Shoar Abouzari, F. Berkemeier, G. Schmitz, and D. Wilmer, “On the physical interpretation of constant phase elements,” *Solid State Ionics*, vol. 180, no. 14–16,

- pp. 922–927, Jun. 2009, doi: 10.1016/j.ssi.2009.04.002.
- [59] T. Osaka, S. Nakade, M. Rajamäki, and T. Momma, “Influence of capacity fading on commercial lithium-ion battery impedance,” *J. Power Sources*, vol. 119–121, pp. 929–933, Jun. 2003, doi: 10.1016/S0378-7753(03)00233-7.
- [60] J. Zhu, M. S. D. Darma, M. Knapp, D. R. Sørensen, M. Here, Q. Fang, X. Wang, H. Dai, L. Mereacre, A. Senyshyn, X. Wei, and H. Ehrenberg, “Investigation of lithium-ion battery degradation mechanisms by combining differential voltage analysis and alternating current impedance,” *J. Power Sources*, vol. 448, p. 227575, Feb. 2020, doi: 10.1016/j.jpowsour.2019.227575.
- [61] “IEC 62619:2017. Secondary cells and batteries containing alkaline or other non-acid electrolytes - Safety requirements for secondary lithium cells and batteries, for use in industrial applications.”
- [62] “IEC 62620:2014. Secondary cells and batteries containing alkaline or other non-acid electrolytes - Secondary lithium cells and batteries for use in industrial applications.”
- [63] “JIS C8711:2019 ポータブル機器用リチウム二次電池.”
- [64] “JIS C8715-1:2018 産業用リチウム二次電池の単電池及び電池システムー 第1部：性能要求事項.”
- [65] K. Onda, M. Nakayama, K. Fukuda, K. Wakahara, and T. Araki, “Cell Impedance Measurement by Laplace Transformation of Charge or Discharge Current–Voltage,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 153, no. 6, p. A1012, 2006, doi: 10.1149/1.2189268.
- [66] 竹野和彦, 代田玲美, “移動端末用リチウムイオン電池の容量劣化特性,” *NTT Docomo テクニカル・ジャーナル*, vol. 13, no. 4, pp. 62–65, 2006, [Online]. Available: https://www.nttdocomo.co.jp/binary/pdf/corporate/technology/rd/technical_journal/bn/vol13_4/vol13_4_062jp.pdf.
- [67] T. Yokoshima, D. Mukoyama, K. Nakazawa, Y. Gima, H. Isawa, H. Nara, T. Momma, and T. Osaka, “Application of Electrochemical Impedance Spectroscopy to Ferri/Ferrocyanide Redox Couple and Lithium Ion Battery Systems Using a Square Wave as Signal Input,” *Electrochim. Acta*, vol. 180, pp. 922–928, Oct. 2015, doi: 10.1016/j.electacta.2015.08.083.
- [68] T. Yokoshima, D. Mukoyama, H. Nara, S. Maeda, K. Nakazawa, T. Momma, and T. Osaka, “Impedance Measurements of Kilowatt-Class Lithium Ion Battery Modules/Cubicles in Energy Storage Systems by Square-Current Electrochemical Impedance Spectroscopy,” *Electrochim. Acta*, vol. 246, pp. 800–811, Aug. 2017, doi: 10.1016/j.electacta.2017.05.076.

- [69] S. Yata, H. Satake, M. Kuriyama, T. Endo, and H. Kinoshita, "Evaluation of Positive Electrode Resistance by 'Current-Rest-Method' Using 'Four-electrode Cell' (Co-, Ni- and Mn-based Cathode Materials)," *Electrochemistry*, vol. 78, no. 5, pp. 400–402, 2010, doi: 10.5796/electrochemistry.78.400.
- [70] A. J. Fairweather, M. P. Foster, and D. A. Stone, "Modelling of VRLA batteries over operational temperature range using Pseudo Random Binary Sequences," *J. Power Sources*, vol. 207, pp. 56–59, Jun. 2012, doi: 10.1016/j.jpowsour.2012.02.024.
- [71] 長岡直人, "大容量蓄電システムと寿命予測," *電気学会論文誌B*, vol. 134, no. 7, pp. 558–561, 2014, doi: 10.1541/ieejpes.134.558.
- [72] M. Chen and G. A. Rincon-Mora, "Accurate Electrical Battery Model Capable of Predicting Runtime and I–V Performance," *IEEE Trans. Energy Convers.*, vol. 21, no. 2, pp. 504–511, Jun. 2006, doi: 10.1109/TEC.2006.874229.
- [73] 乾義尚, 渡邊裕, 小林善和, "リチウムイオン二次電池の電圧過渡応答の数値シミュレーション," *電気学会論文誌B*, vol. 126, no. 5, pp. 532–538, 2006, doi: 10.1541/ieejpes.126.532.
- [74] 仁科辰夫, 伊藤智博, 立花和宏, "LiSB電流遮断後の過電圧緩和過程のモデル化," *科学・技術研究*, vol. 5, no. 2, pp. 217–223, 2016, doi: <https://doi.org/10.11425/sst.5.217>.
- [75] 板垣昌幸, *電気化学インピーダンス法 第2版 原理・測定・解析*. 丸善出版, 2011.
- [76] I. Bloom, J. Christophersen, and K. Gering, "Differential voltage analyses of high-power lithium-ion cells," *J. Power Sources*, vol. 139, no. 1–2, pp. 304–313, Jan. 2005, doi: 10.1016/j.jpowsour.2004.07.022.
- [77] K. Honkura, K. Takahashi, and T. Horiba, "Capacity-fading prediction of lithium-ion batteries based on discharge curves analysis," *J. Power Sources*, vol. 196, no. 23, pp. 10141–10147, Dec. 2011, doi: 10.1016/j.jpowsour.2011.08.020.
- [78] Y. Kobayashi, T. Kobayashi, K. Shono, Y. Ohno, Y. Mita, and H. Miyashiro, "Decrease in Capacity in Mn-Based/Graphite Commercial Lithium-Ion Batteries," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 160, no. 8, pp. A1181–A1186, May 2013, doi: 10.1149/2.071308jes.
- [79] 石田隆張, "急速充電器のログデータによるEV電池の劣化状態分析," *電気学会産業応用部門 スマートファシリティ研究会資料*, no. SMF-17-047, 2017, [Online]. Available: <http://id.nii.ac.jp/1031/00107038/>.
- [80] 森田朋和, 門田行生, 本多啓三, "内部状態の推定により電池の健全性を可視化する充電曲線解析法," *東芝レビュー*, vol. 68, no. 10, pp. 54–57, 2013, [Online]. Available: https://www.toshiba.co.jp/tech/review/2013/10/68_10pdf/f07.pdf.
- [81] G. L. Plett, "Extended Kalman filtering for battery management systems of LiPB-based HEV battery packs: Part 1. Background," *J. Power Sources*, vol. 134, no. 2,

- pp. 252–261, Aug. 2004, doi: 10.1016/j.jpowsour.2004.02.031.
- [82] G. L. Plett, “Extended Kalman filtering for battery management systems of LiPB-based HEV battery packs: Part 2. Modeling and identification,” *J. Power Sources*, vol. 134, no. 2, pp. 262–276, Aug. 2004, doi: 10.1016/j.jpowsour.2004.02.032.
- [83] G. L. Plett, “Extended Kalman filtering for battery management systems of LiPB-based HEV battery packs: Part 3. State and parameter estimation,” *J. Power Sources*, vol. 134, no. 2, pp. 277–292, Aug. 2004, doi: 10.1016/j.jpowsour.2004.02.033.
- [84] G. L. Plett, “Sigma-point Kalman filtering for battery management systems of LiPB-based HEV battery packs: Part 1: Introduction and state estimation,” *J. Power Sources*, vol. 161, no. 2, pp. 1356–1368, Oct. 2006, doi: 10.1016/j.jpowsour.2006.06.003.
- [85] G. L. Plett, “Sigma-point Kalman filtering for battery management systems of LiPB-based HEV battery packs: Part 2: Simultaneous state and parameter estimation,” *J. Power Sources*, vol. 161, no. 2, pp. 1369–1384, Oct. 2006, doi: 10.1016/j.jpowsour.2006.06.004.
- [86] 水谷麻美, 井出誠, 小林武則, 山崎修司, “運用稼働中の蓄電池システムに適用可能なSOC差を用いた電池容量推定手法,” *電気学会論文誌B*, vol. 140, no. 5, pp. 415–422, May 2020, doi: 10.1541/ieejpes.140.415.
- [87] 馬場厚志, 足立修一, “対数化UKFを用いたリチウムイオン電池の状態とパラメータの同時推定,” *電気学会論文誌D*, vol. 133, no. 12, pp. 1139–1147, 2013, doi: 10.1541/ieejias.133.1139.
- [88] M. Oya, K. Takaba, L. Lin, R. Ishizaki, N. Kawarabayasi, and M. Fukui, “SOC Estimation of Lithium-Ion Batteries Based on Parameter-Dependent State-Space Model,” *Trans. Inst. Syst. Control Inf. Eng.*, vol. 29, no. 10, pp. 433–440, 2016, doi: 10.5687/iscie.29.433.
- [89] R. Ishizaki, L. Lin, and M. Fukui, “An Accurate SOC Estimation Method for Lithium-ion Batteries which Considers Thermal Variation,” *Electrochemistry*, vol. 83, no. 10, pp. 852–854, 2015, doi: 10.5796/electrochemistry.83.852.
- [90] B. Haus and P. Mercorelli, “Polynomial Augmented Extended Kalman Filter to Estimate the State of Charge of Lithium-Ion Batteries,” *IEEE Trans. Veh. Technol.*, vol. 69, no. 2, pp. 1452–1463, Feb. 2020, doi: 10.1109/TVT.2019.2959720.
- [91] R. Xiong, F. Sun, X. Gong, and C. Gao, “A data-driven based adaptive state of charge estimator of lithium-ion polymer battery used in electric vehicles,” *Appl. Energy*, vol. 113, pp. 1421–1433, Jan. 2014, doi: 10.1016/j.apenergy.2013.09.006.
- [92] M. Oya, W. Sueki, Y. Hayakawa, K. Takaba, and M. Fukui, “Combined RLS-EKF

- Method for Simultaneous SOC and Parameter Estimations for Lithium-Ion Batteries,” *ECS Trans.*, vol. 80, no. 10, pp. 207–217, Oct. 2017, doi: 10.1149/08010.0207ecst.
- [93] Datong Liu, Jianbao Zhou, Haitao Liao, Yu Peng, and Xiyuan Peng, “A Health Indicator Extraction and Optimization Framework for Lithium-Ion Battery Degradation Modeling and Prognostics,” *IEEE Trans. Syst. Man, Cybern. Syst.*, vol. 45, no. 6, pp. 915–928, Jun. 2015, doi: 10.1109/TSMC.2015.2389757.
- [94] 手塚太郎, しくみがわかる深層学習, 第2版. 朝倉書店, 2018.
- [95] A. Eddahech, O. Briat, N. Bertrand, J.-Y. Deléage, and J.-M. Vinassa, “Behavior and state-of-health monitoring of Li-ion batteries using impedance spectroscopy and recurrent neural networks,” *Int. J. Electr. Power Energy Syst.*, vol. 42, no. 1, pp. 487–494, Nov. 2012, doi: 10.1016/j.ijepes.2012.04.050.
- [96] Y. Zhang, R. Xiong, H. He, and M. G. Pecht, “Long Short-Term Memory Recurrent Neural Network for Remaining Useful Life Prediction of Lithium-Ion Batteries,” *IEEE Trans. Veh. Technol.*, vol. 67, no. 7, pp. 5695–5705, Jul. 2018, doi: 10.1109/TVT.2018.2805189.
- [97] 三菱総合研究所, “定置用蓄電池の普及拡大及びアグリゲーションサービスへの活用に関する調査,” 2017. [Online]. Available: https://www.meti.go.jp/meti_lib/report/H28FY/000479.pdf.
- [98] Q. Hou, Y. Yu, E. Du, H. He, N. Zhang, C. Kang, G. Liu, and H. Zhu, “Embedding scrapping criterion and degradation model in optimal operation of peak-shaving lithium-ion battery energy storage,” *Appl. Energy*, vol. 278, p. 115601, Nov. 2020, doi: 10.1016/j.apenergy.2020.115601.
- [99] 吉田典正, 加納顕也, 北嶋克寛, “ガウス関数に基づくFree-Form Deformation 対話的なモデル変形のための基礎理論,” 精密工学会誌, vol. 65, no. 7, pp. 971–975, 1999, doi: <https://doi.org/10.2493/jjspe.65.971>.
- [100] P. E. Pascoe and A. H. Anbuky, “The behaviour of the coup de fouet of valve-regulated lead–acid batteries,” *J. Power Sources*, vol. 111, no. 2, pp. 304–319, Sep. 2002, doi: 10.1016/S0378-7753(02)00316-6.
- [101] W. Majchrzycki, E. Jankowska, M. Baraniak, P. Handzlik, and R. Samborski, “Electrochemical Impedance Spectroscopy and Determination of the Internal Resistance as a Way to Estimate Lead-Acid Batteries Condition,” *Batteries*, vol. 4, no. 4, p. 70, Dec. 2018, doi: 10.3390/batteries4040070.
- [102] C. P. de Oliveira and M. C. Lopes, “Early stages of the lead-acid battery discharge,” *J. Power Sources*, vol. 138, no. 1–2, pp. 294–300, Nov. 2004, doi: 10.1016/j.jpowsour.2004.06.009.

- [103] U. Abronzini, C. Attaianesi, M. D'Arpino, M. Di Monaco, A. Genovese, G. Pede, and G. Tomasso, "Optimal energy control for smart charging infrastructures with ESS and REG," in *2016 International Conference on Electrical Systems for Aircraft, Railway, Ship Propulsion and Road Vehicles & International Transportation Electrification Conference (ESARS-ITEC)*, Nov. 2016, pp. 1–6, doi: 10.1109/ESARS-ITEC.2016.7841427.
- [104] 総務省統計局, "統計でみる都道府県のすがた 2020," 2020.
http://www.stat.go.jp/data/k-sugata/pdf/all_ken2020.pdf (accessed Nov. 01, 2020).
- [105] 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*, vol. 39, no. 3, pp. 11–20, 2018, doi:
https://doi.org/10.24778/jjser.39.3_11.
- [106] L. Lin, N. Kawarabayashi, M. Fukui, S. Tsukiyama, and I. Shirakawa, "A Practical and Accurate SOC Estimation System for Lithium-Ion Batteries by EKF," in *2014 IEEE Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC)*, Oct. 2014, pp. 1–6, doi:
 10.1109/VPPC.2014.7007006.
- [107] 小笠原啓佑, 西口博人, "リチウムイオン電池の劣化評価," *電気化学会第82回大会*, p. 2J07, 2015.
- [108] Y. Leng, S. Ge, D. Marple, X. G. Yang, C. Bauer, P. Lamp, and C. Y. Wang, "Electrochemical Cycle-Life Characterization of High Energy Lithium-Ion Cells with Thick $\text{Li}(\text{Ni}_{0.6}\text{Mn}_{0.2}\text{Co}_{0.2})\text{O}_2$ and Graphite Electrodes," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 164, no. 6, pp. A1037–A1049, Mar. 2017, doi: 10.1149/2.0451706jes.
- [109] 三菱総合研究所, "平成29年度新エネルギー等導入促進基礎調査 ソーラーシミュラリティの影響度等に関する調査," 2018. [Online]. Available:
https://www.meti.go.jp/meti_lib/report/H29FY/000017.pdf.
- [110] 日本卸電力取引所, "スポット市場取引結果." <http://www.jepx.org/market/index.html> (accessed Nov. 01, 2020).
- [111] 西俊輔, 江口政樹, "太陽光発電用パワーコンディショナ効率改善に関する検討," *パワーエレクトロニクス学会誌*, vol. 31, pp. 143–149, 2005, doi:
 10.5416/jipe2003.31.0_143.
- [112] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, "Three degradation parameters estimation of a LIB module using single indicator for in-situ charge-discharge energy prediction," in *INTELEC, International Telecommunications Energy Conference (Proceedings)*, 2019, vol. 2018-October, doi: 10.1109/INTLEC.2018.8612409.
- [113] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, "Case study of photovoltaic energy surplus absorption by charging lithium-ion batteries considering charge-discharge energy efficiency," in *ICCE-Berlin, IEEE International Conference on Consumer*

- Electronics - Berlin*, 2019, vol. 2019-Septe, doi: 10.1109/ICCE-Berlin47944.2019.8966214.
- [114] 有馬理仁, 林磊, 福井正博, “リチウムイオン蓄電池の経済運用に向けた開放電圧のフリーフォーム変形学習の提案,” *電子情報通信学会和文論文誌B*, vol. J104-B, no. 3, 2021 (in press).
- [115] R. M. Sakia, “The Box-Cox Transformation Technique: A Review,” *Stat.*, vol. 41, no. 2, p. 169, 1992, doi: 10.2307/2348250.
- [116] Y. Hu, S. Yurkovich, Y. Guezennec, and B. J. Yurkovich, “Electro-thermal battery model identification for automotive applications,” *J. Power Sources*, vol. 196, no. 1, pp. 449–457, Jan. 2011, doi: 10.1016/j.jpowsour.2010.06.037.
- [117] A. Szumanowski and Yuhua Chang, “Battery Management System Based on Battery Nonlinear Dynamics Modeling,” *IEEE Trans. Veh. Technol.*, vol. 57, no. 3, pp. 1425–1432, May 2008, doi: 10.1109/TVT.2007.912176.
- [118] C. Weng, J. Sun, and H. Peng, “A unified open-circuit-voltage model of lithium-ion batteries for state-of-charge estimation and state-of-health monitoring,” *J. Power Sources*, vol. 258, pp. 228–237, Jul. 2014, doi: 10.1016/j.jpowsour.2014.02.026.
- [119] S. Hussain, R. Al-ammari, A. Iqbal, M. Jafar, and S. Padmanaban, “Optimisation of hybrid renewable energy system using iterative filter selection approach,” *IET Renew. Power Gener.*, vol. 11, no. 11, pp. 1440–1445, Sep. 2017, doi: 10.1049/iet-rpg.2017.0014.
- [120] I. Zenginlis, J. S. Vardakas, J. Abadal, C. Echave, M. M. Guell, and C. Verikoukis, “Optimal Power Equipment Sizing and Management for Cooperative Buildings in Microgrids,” *IEEE Trans. Ind. Informatics*, vol. 15, no. 1, pp. 158–172, Jan. 2019, doi: 10.1109/TII.2018.2835455.
- [121] F. Ahmad, M. S. Alam, S. M. Shariff, and M. Krishnamurthy, “A Cost-Efficient Approach to EV Charging Station Integrated Community Microgrid: A Case Study of Indian Power Market,” *IEEE Trans. Transp. Electrification*, vol. 5, no. 1, pp. 200–214, Mar. 2019, doi: 10.1109/TTE.2019.2893766.
- [122] N. Liu, Q. Chen, J. Liu, X. Lu, P. Li, J. Lei, and J. Zhang, “A Heuristic Operation Strategy for Commercial Building Microgrids Containing EVs and PV System,” *IEEE Trans. Ind. Electron.*, vol. 62, no. 4, pp. 2560–2570, Apr. 2015, doi: 10.1109/TIE.2014.2364553.
- [123] Y. Levron, J. M. Guerrero, and Y. Beck, “Optimal Power Flow in Microgrids With Energy Storage,” *IEEE Trans. Power Syst.*, vol. 28, no. 3, pp. 3226–3234, Aug. 2013, doi: 10.1109/TPWRS.2013.2245925.
- [124] J. V. Roy, N. Leemput, S. D. Breucker, F. Geth, P. Tant, and J. Driesen, “An

- Availability Analysis and Energy Consumption Model for a Flemish Fleet of Electric Vehicles,” in *European Electric Vehicle Congress (EEVC)*, 2011, [Online]. Available: https://limo.libis.be/primo-explore/fulldisplay?docid=LIRIAS1730977&context=L&vid=Lirias&search_scope=Lirias&tab=default_tab&lang=en_US&fromSitemap=1.
- [125] CHAdeMO協議会, “CHAdeMO認証急速充電器型番一覧.” <https://www.chademo.com/wp2016/wp-content/uploads/pdf/qcnintei.pdf> (accessed Nov. 23, 2020).
- [126] I. Baghdadi, O. Briat, P. Gyan, and J. M. Vinassa, “Lithium Battery Aging Model Based on Chemical Rate Approach,” in *2016 IEEE Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC)*, Oct. 2016, pp. 1–6, doi: 10.1109/VPPC.2016.7791720.
- [127] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, “Study of Charge–Discharge Energy Prediction Using Neural Networks for Improving the Operational Economic Efficiency of Lithium-Ion Battery Aggregation,” in *235th ECS Meeting*, 2019, pp. A02-0391, [Online]. Available: <https://ecs.confex.com/ecs/235/meetingapp.cgi/Paper/121467>.
- [128] 長尾智晴, 最適化アルゴリズム, 初版第9刷. 昭晃堂, 2000.
- [129] C.M. ビショップ, パターン認識と機械学習 上 ベイズ理論による統計的予測, 第7刷. 丸善出版, 2012.
- [130] G. E. Hinton, S. Osindero, and Y.-W. Teh, “A Fast Learning Algorithm for Deep Belief Nets,” *Neural Comput.*, vol. 18, no. 7, pp. 1527–1554, Jul. 2006, doi: 10.1162/neco.2006.18.7.1527.
- [131] M. Arima, L. Lin, and M. Fukui, “An Algorithm of Charge-Discharge Curve Estimation and Full Charge Capacity Correction for Lithium-ion Battery Module,” in *IMLB2018, The 19th International Meeting on Lithium Batteries*, 2018, p. P552THR, [Online]. Available: http://www.imlb2018.org/pdf/a11_2550745.pdf.

謝辞

本研究をまとめるにあたり、懇切丁寧なご指導を賜りました立命館大学大学院理工学研究科 福井正博教授に心より感謝申し上げます。福井先生にはリチウムイオン蓄電池に係る電子工学と電気化学の境界領域の可能性、数理解析とモデリングの技術、有益な学会・研究会へと導いて頂き、また博士論文審査の主査をして頂きました。ここに改めてお礼申し上げます。

本研究を進めるにあたって多くのご教示、ご指導を賜りました立命館大学大学院経済学研究科 島田幸司教授 および立命館大学大学院理工学研究科 鷹羽浄嗣教授 富山宏之教授 孟林准教授に深く感謝いたします。また島田教授、鷹羽教授、富山教授には博士論文審査の副査をして頂きました。重ねてお礼申し上げます。

本研究を進めるにあたって様々のご教示と激励を賜りました大阪大学名誉教授ならびに兵庫県立大学特任教授の白川功博士に深く感謝いたします。

本研究を進める中で多大なるご指導とご意見を頂きました元 立命館グローバル・イノベーション研究機構の林磊博士、および立命館大学大学院理工学研究科 福井研究室の塩原孝弘様、松下修平様、修士課程・学部の学生の皆様に深く感謝いたします。また林磊博士は2020年10月より大和製罐株式会社に入社され、本論文執筆時期には同僚としてもご支援を頂きました。重ねてお礼申し上げます。

本研究を各種リソース面から支援頂くとともに、社会人博士課程で学ぶ機会を与えて頂き、研究進捗にあたって多大なるご支援とご配慮を賜りました大和製罐株式会社に感謝いたします。あわせて同社およびグループ各社の 小林淳様、大森教雄様、長嶋玲様、永田洋平様、鬼木直樹様、榎木泰史様、そして同僚の皆様の多大なるご支援・ご理解・ご配慮に感謝いたします。

本研究をはじめのきっかけとなる雑談の中の貴重な一言を頂き、その後も多大なるご支援を賜りました株式会社ピューズの深沢保様に感謝いたします。

最後に、長い間応援し、常に暖かく見守ってくれた妻 和恵ならびに家族に感謝します。