

システムの高信頼設計を可能とする 大容量産業用リチウムイオン電池の寿命予測技術

Lifetime Prediction of Lithium-Ion Batteries for High-reliability System

阿部 誠 西村 勝憲 関 栄二 春名 博史
Abe Makoto Nishimura Katsunori Seki Eiji Haruna Hiroshi
平沢 今吉 伊藤 真吾 芦浦 正
Hirasawa Tokiyoshi Ito Shingo Yoshiura Tadashi

自然エネルギーの出力変動緩和やバックアップ電源に用いる蓄電システムにおいて、電池の寿命はシステムコストや信頼性を左右する。この研究ではリチウムイオン電池の寿命予測精度の向上を目的とし、従来手法のルート則、アレニウス則、加成則を統合した寿命予測式を構築し、充放電回数、稼働時間、環境温度の3変数を同時に扱うことが可能な寿命予測技術を確立した。この予測技術により、搭載電池容量の最少化によるシステムコストの低減や、マージン把握によるシステムの高信頼化を果すことが可能となる。この技術を蓄電システムの電池寿命予測に活用することにより、コスト低減、高信頼化などに貢献できる。

1. はじめに

リチウムイオン電池(以下、電池と記す。)は、エネルギー密度が高く、コンパクトで軽量であるため、自然エネルギー発電システムの出力変動緩和やバックアップ電源などの蓄電システムへの活用が期待されている。これらの用途に用いる電池の寿命を適切に予測することで、蓄電システムのコスト適正化やシステム寿命の高信頼化を達成できる。しかしながら、従来技術では、寿命を予測するときに考慮すべき充放電回数、稼働時間、環境温度の3変数を同時に扱う技術は確立されておらず、電池の寿命を高精度に予測するには不十分であった。

以上の背景から、3変数を用いた寿命予測式を確立し、寿命を高精度に予測する技術を開発した。

ここでは、システムの高信頼設計を可能とする大容量産業用リチウムイオン電池の寿命予測技術について述べる。

2. 電池の寿命と従来予測技術

電池は充放電を繰り返していると、徐々に容量が低下することが知られている(図1参照)。蓄電システムの設計では、稼働期間にわたって必要とする設計容量を確保する

ために、電池の容量低下を見込んで初期の容量を決定する。そのため、電池が設計容量に到達する稼働時間(以下、寿命と記す。)を高精度に予測する技術が重要となる。寿命を高精度に予測するには、容量低下を引き起こす現象を把握し、適切な変数を用いた予測式を構築することが必要となる。

電池の容量低下は、次の二つの現象による劣化が起因していると考えた。一方は、充放電をしたときの正負極材料の膨張収縮による劣化(以下、充放電劣化と記す。)であり、充放電を繰り返すことで進行する。他方は、電池内部の化学反応による劣化(以下、稼働時間劣化と記す。)であり、充放電をしなくとも時間に応じて進行する。二つの劣化はおのおのが独立に進行し、両者の和が電池の容量低下を引き起こすと考えた。そのため、充放電回数のみではなく、電池の稼働時間を考慮することが必要である。

加えて、充放電劣化、稼働時間劣化はともに電池の温度

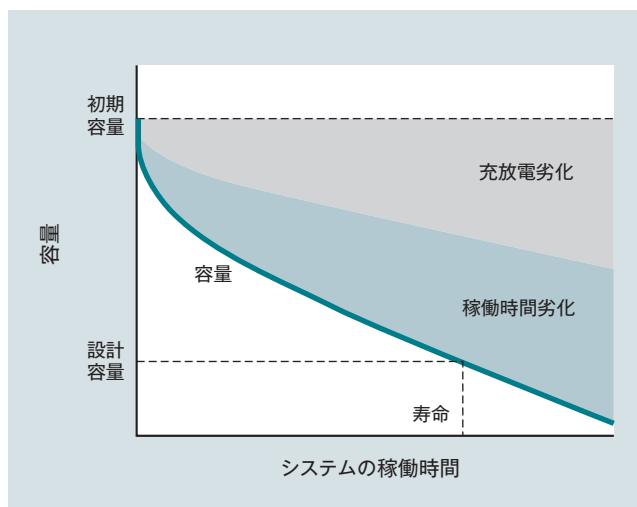


図1 | 電池寿命の定義と容量低下

電池は充放電を繰り返すと容量が低下する。電池の容量低下は、充放電劣化と稼働時間劣化がおのおの独立して進行すると考えた。

が高くなると加速することが知られていることから、環境温度についても考えなければならない。

以上のことから、電池の寿命を高精度に予測するためには、充放電回数、稼働時間、環境温度の3変数を用いた予測式が必要と考えた。

従来の予測技術を三つに大別して説明する。

ルート則は、電池の容量低下が充放電回数の平方根に比例するとの考え方から、容量を外挿して、充放電劣化による寿命を予測する技術である¹⁾。同様にルート則では、電池の容量低下が稼働時間の平方根に比例するとの考え方から、稼働時間劣化による寿命を予測することも可能である。

アレニウス則は、温度を変えたときの電池の容量低下をそれぞれルート則で近似し、おのおののルート則の傾きが温度の指数関数に比例するとの考えから、寿命を予測する方法である²⁾。

加成則はルート則で得た稼働時間劣化、充放電劣化を足し合わせて寿命を予測する手法である³⁾。

ルート則は充放電劣化、稼働時間劣化のいずれか一方の劣化のみを扱う予測であり、かつ、おのおのの劣化の温度による加速を考慮することができない。同様に、アレニウス則、加成則についても充放電回数、稼働時間、環境温度の3変数を同時には扱えない。そのため従来の予測技術は、電池の寿命を高精度に予測するには不十分であった。そこで、この検討では、従来技術を統合し、3変数を用いた寿命予測式を構築し、電池の寿命を高精度に予測する技術を開発した。

3. 寿命予測技術の確立

3.1 寿命予測式の導出

開発した寿命予測式は、従来技術の考え方を統合した式とした(図2参照)。稼働時間劣化は稼働時間のルートに、充放電劣化は充放電回数のルートに従う式とした。また、稼働時間劣化、充放電劣化の速度を決める因子の一つである環境温度 T は、指数関数で表されるアレニウス式に従うこととした。加えて、稼働時間劣化と充放電劣化をおのおの独立して計算し、その和を1から減ずることで、初期の容量を100%としたときの容量の比(以下、容量維持率と

$$Q_R = 1 - \left(\underbrace{A_p \cdot e^{-\frac{E_p}{RT}} \cdot \sqrt{N_p}}_{\text{稼働時間劣化}} + \underbrace{A_{cyc} \cdot e^{-\frac{E_{cyc}}{RT}} \cdot \sqrt{N_{cyc}}}_{\text{充放電劣化}} \right)$$

図2 | 開発した寿命予測式

環境温度 T 、稼働時間 N_p 、充放電回数 N_{cyc} を変数とし、容量維持率 Q_R を算出する。

記す。)を算出した。

式は充放電回数 N_{cyc} 、稼働時間 N_p 、環境温度 T を変数とし、容量維持率 Q_R を算出するものとした。式中の定数 R は気体定数であり、ほかの四つの定数 A_p 、 A_{cyc} 、 E_p 、 E_{cyc} は稼働時間劣化、充放電劣化の速度を表す定数である。気体定数以外の四つの定数は電池の試験結果を用いて求めた。試験は稼働時間劣化の定数を定めるための保存試験、および充放電劣化の定数を定めるための充放電試験をおのおの環境温度25℃、35℃、45℃の3条件で実施した。

稼働時間劣化の定数は保存試験の各温度での試験結果をルート則で近似し、ルート則の傾きの対数を縦軸、環境温度の逆数を横軸とするアレニウスプロット上に表し、定数 A_p 、 E_p を算出した。

充放電劣化の定数も、同様の手順によって充放電試験の結果を用いて算出した。ただし、充放電試験の結果には、充放電劣化に加えて、充放電試験に要した日数分の稼働時間劣化が含まれるため、定数を算出する前に充放電試験の結果から充放電劣化の成分のみを分離した。充放電試験に要した日数を、先に求めた稼働時間劣化の式(図2参照)に当てはめて、稼働時間劣化を算出し、充放電試験結果との差を求めることで、充放電劣化の成分のみを切り分けた。この計算によって得た充放電劣化の成分のみを用いて、稼働時間劣化と同様の手順により、充放電劣化の定数 A_{cyc} 、 E_{cyc} を決定した。

3.2 寿命予測式と実測結果の比較

寿命予測式と長期充放電試験結果とを比較し、寿命予測式の妥当性を検証した。電池の長期充放電試験は2年半にわたり6,000回のサイクルの試験を実施した。白色丸印で

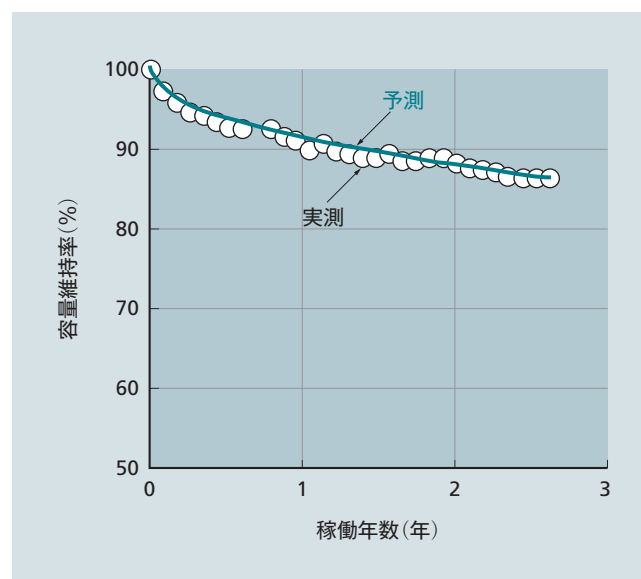


図3 | 電池試験結果

長期充放電試験結果と予測結果を示す。実測と予測がよく一致した。

長期充放電試験の実測結果を、青色線で予測結果を図3に示す。実測結果と予測結果を比較すると容量維持率の推移がよく一致しており、開発した寿命予測式が妥当であることがわかる。

4. 寿命予測の活用例

開発した寿命予測技術の活用により、これまで大きなマージンを必要としていたシステムへの搭載電池容量を最少化することが可能となり、システムコストを低減できる。また、充放電回数や環境温度のマージン把握によるシステムの高信頼化なども期待できる。以下では、具体的な事例を用いて活用例を説明する。

4.1 寿命予測

あらかじめ定められた環境温度、充放電回数の条件下での寿命の予測結果を図4に示す。計算では環境温度を25℃、充放電回数を1日4回とした。その結果、10年後の容量維持率は75%であることを見通した。

この結果を用いて、蓄電システムへの搭載電池容量を設計することができる。例えば、システムの設計容量を容量維持率75%に相当する値とし、それを10年間にわたって確保するには、初期容量を設計容量の1.33倍（75%の逆数）とすればよいことがわかる。

この例で示すように、電池の寿命を高精度に予測することで、これまで大きなマージンを必要としていた搭載電池容量を最少化することが可能となり、システムコストを低減できる。

また、この寿命予測式は稼働時間劣化と充放電劣化の割合を比較することが可能である。両者の劣化を比較する

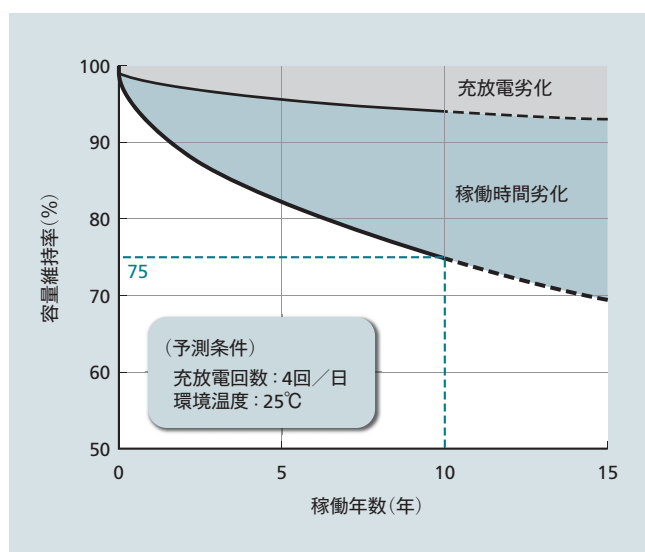


図4 | 寿命予測結果

規定の環境温度、充放電回数での寿命を予測した結果を示す。電池の寿命を高精度に予測することで、システムコストを低減できる。

と、この電池の特徴として、充放電劣化よりも稼働時間劣化の方が支配的である、との知見を得ることができた。

4.2 マージン把握

環境温度、充放電回数のいずれか一方を固定条件として、他方を変えた際の予測結果を示す（図5参照）。

この検討では、環境温度を25℃にした場合、充放電回数が1日4回から8回の範囲で変動しても容量維持率の推移がほとんど変わらないことがわかる。一方、充放電回数を1日4回とした場合には、環境温度25℃では10年後の容量維持率が75%であったのに対し、32℃で使用した場合には60%まで低下することがわかる。

これらの例からわかるように、充放電回数、環境温度のマージンを把握することで、日ごとの充放電回数や環境温度が変動した場合でも設計容量を確保するためのシステム設計が可能となり、システムの高信頼化を果たすことができる。

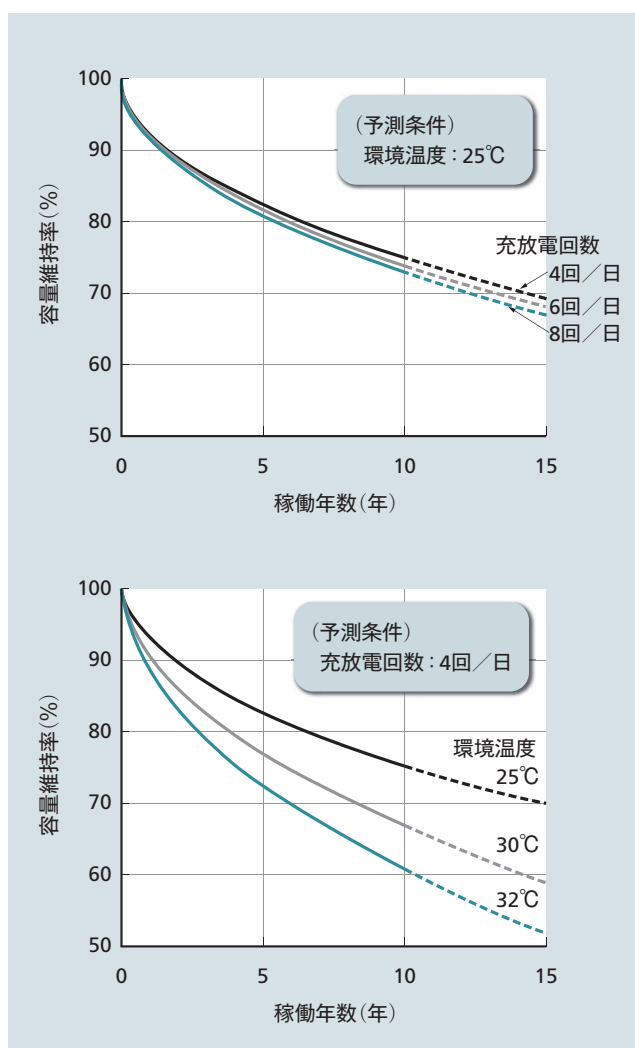


図5 | マージン把握

環境温度、充放電回数のいずれか一方を固定条件として、他方を変えた際の予測結果を示す。充放電回数、環境温度のマージンを把握することで、システムの高信頼化を果たすことができる。

5. おわりに

ここでは、システムの高信頼設計を可能とする大容量産業用リチウムイオン電池の寿命予測技術について述べた。

この研究では充放電回数、稼働時間、環境温度の3変数を同時に扱うことができる寿命予測技術を開発した。開発した寿命予測技術の活用により、これまで大きなマージンを必要としていたシステムへの搭載電池容量を最少化することが可能となり、システムコストを低減できる。また、充放電回数や環境温度のマージン把握によるシステムの高信頼化なども期待できる。今後は、この技術を蓄電システムの電池寿命予測に活用し、コスト適正化、高信頼化などに貢献していく。

この予測では環境温度を変数として扱ったが、電池の使用条件によっては電池が発熱し、環境温度と電池温度は必ずしも等しくならないため、電池の発熱による影響を考慮する必要がある。また、電池の稼働中に突発的に発生する劣化因子などについては考慮することができない。今後、上述した因子を取り入れた予測式を構築し、寿命予測の適用範囲を拡張していく必要がある。

この研究は独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) から日立製作所が委託を受けて推進した「系統連系円滑化蓄電システム技術開発 要素技術開発」の一環として得られたものである。ここに謝意を表する次第である。

参考文献

- 1) T. Yoshida, et al. : Degradation Mechanism and Life Prediction of Lithium-Ion Batteries, Journal of Electrochemical Society, 153 (3) , A576-A582 (2006)
- 2) H.Yoshida, et al. : Capacity Loss Mechanism of Space Lithium-Ion Cells and its Life Estimation Method, Electrochemistry, 71 (12) , 1018 (2003)
- 3) 小林, 外 : 系統連系円滑化用リチウムイオン電池性能解析手法の開発, 第51回電池討論会要旨集, p.117, 電気化学会電池技術委員会 (2010.11)

執筆者紹介



阿部 誠

1992年日立製作所入社, 日立研究所 材料研究センタ 電池研究部 所属
現在, リチウムイオン電池電解液材料の研究開発に従事



西村 勝憲

1992年日立製作所入社, 日立研究所 材料研究センタ 電池研究部 所属
現在, リチウムイオン電池電解液材料の研究開発に従事
博士 (理学)
電気化学会会員



関 栄二

1994年日立製作所入社, 日立研究所 材料研究センタ 電池研究部 所属
現在, リチウムイオン電池負極材料の研究開発に従事



春名 博史

2003年日立製作所入社, 日立研究所 材料研究センタ 電池研究部 所属
現在, リチウムイオン電池電解液材料の研究開発に従事
日本化学会会員



平沢 今吉

1978年新神戸電機株式会社入社, 技術開発本部 所属
現在, 産業リチウムイオン電池の開発に従事
電気化学会会員, 電気学会会員



伊藤 真吾

2007年新神戸電機株式会社入社, 技術開発本部 産業リチウムイオン電池開発センタ 所属
現在, 産業リチウムイオン電池の開発に従事



芦浦 正

2008年新神戸電機株式会社入社, 技術開発本部 産業リチウムイオン電池開発センタ 所属
現在, 産業リチウムイオン電池の開発に従事