

論文・解説

33

## ビルディングブロックを支えるバッテリーモデルベース開発 Battery Model Based Development for Building Block Strategy

藤田 弘輝\*1

Hiroki Fujita

庄司 明\*2

Akira Shyoji

松井 恒平\*3

Kohei Matsui

宇都宮 隆\*4

Takashi Utsunomiya

楊 殿宇\*5

Tenyu Yan

大路 潔\*6

Kiyoshi Oji

### 要 約

マツダは、環境戦略としてi-stop, 減速回生, モータ駆動と, 段階的に電気デバイスを付与していく「ビルディングブロック戦略」を進めている。これらの進化を実現するために, バッテリー領域の技術を高度かつ迅速に構築していく必要があり, 研究開発を支えるモデルベース開発が重要になってくる。今回, バッテリーモデルベース開発で核となるモデル化について, 種々のバッテリーに適用できるモデル作成技術構築のための考え方や作成方法を中心に紹介する。

### Summary

Mazda is promoting the “Building Block Strategy” as its environmental strategy, with a view to offering electric devices in stages such as i-stop, regenerative braking system, and motor drive technology. To evolve these electric devices, it is important to quickly establish advanced technologies in the battery domain and carry out Model Based Development that supports research and development activities. This article introduces a viewpoint of and procedure for establishing a model building technology that can be applied to various batteries and plays a key role in the Model Based Development of batteries.

### 1. はじめに

マツダは、ベース技術の徹底追求と電気デバイス技術の段階的導入による環境技術の進化を目指した「ビルディングブロック戦略」を掲げている。この戦略に基づき、2012年には、減速時に失われる運動エネルギー（以下、減速エネルギー）を回収し、車の消費電力として再利用する、世界初のキャパシタを用いた減速回生システム（i-ELOOP）を導入した。各社からも同様の減速回生システムが提案されており、減速エネルギー回生技術が拡大してきている。一方、各国の燃費規制に対応するためには、更なる燃費向上が必要であり、次のブロックへ向けた新しいシステムの検討が必要である。

その中で、車に求められる機能は高度化、多様化する一方であり、これらを実現するためのバッテリーシステムは今後ますます進化が加速していく方向にある。このようなバッテリーシステムを、限られたリソースの中で迅速に開発し

続けるには、開発そのものを机上で効率よく行う「モデルベース開発」（MBD：Model Based Development）が極めて重要である。

### 2. バッテリーモデルベース開発

バッテリー開発プロセスの中で、特に開発初期の車両のシステム構想やバッテリーの詳細設計時にモデル適用が重要になってくる。

開発初期では、異なる燃焼方式のエンジンの採用や各種電気駆動システムの採用、そしてこれらを組み合わせた場合に、目標とする車両性能を満足させるために求められるバッテリーシステムの要求仕様を効率よく設定する必要がある。

バッテリーの詳細設計では、市場での使われ方を十分に把握し、その使われ方におけるバッテリーの異常劣化がないことを見極め、寿命信頼性を加味したバッテリー要求仕様を導き出す必要がある。

\*1,2,4~6 技術研究所  
Technical Research Center

\*3 電気駆動システム開発室  
Electric Drive System Development Office

バッテリー開発を行う上で最も時間がかかるのは、寿命信頼性である。寿命信頼性評価は、一般的に、バッテリーの劣化に影響度が大きい劣化因子（例えば、温度、電圧、電流など）を加速させることで、短時間で評価（加速劣化試験）する方法がとられている。しかし、複数の市場の使われ方での寿命検証を行うためには、膨大な試験数が必要となる。一方、バッテリーは日進月歩で進化しており、材料系（リチウムイオン電池の場合：三元系、Fe系、Mn系、Liリッチ系など）の違い、原理（鉛蓄電池、キャパシタ、ニッケル水素電池、リチウムイオン電池）の違いなど検討すべきバッテリーは多岐にわたる。これら複数のバッテリーを比較検討するためには、膨大な時間を要してしまう。

これら課題の解決には、モデルを用いることが効果的であり、机上検証による短時間検証及び複数条件での同時評価を可能とし、実車評価を減らすことで効率的にバッテリー開発を進めることが期待できる。

そこで、簡便でありながら、原理原則やメカニズムに基づきバッテリーの状態を再現できるモデル作成が求められる。そのためには、各バッテリーの充放電挙動や劣化挙動において、その挙動のメカニズムが共通の部分と非共通の部分を明確にし、共通部分をベースとしたモデル化ができれば、汎用性のあるモデル化技術を構築できると考えた。本稿では、モデルベース開発を進める上で必要なモデル化において、考え方や作成方法について紹介する。

ここで、バッテリー挙動のモデル化について説明する。車の使われ方は、走行と駐車に大別される。走行時は、バッテリーは充放電状態であり、これにより発熱し劣化が進行するので、充放電モデル、温度モデルと劣化モデルが必要となる。駐車時は、バッテリーは保存状態であり、保存により劣化が進行するので劣化モデルが必要となる。このように、バッテリーの挙動は、3種のモデルによって表現することができる。今回は、充放電モデルと劣化モデルについて紹介する。

### 3. 充放電モデル

#### 3.1 充放電モデルの考え方

バッテリーの充放電挙動のモデル化に関して、バッテリーの充放電メカニズムから考える (Fig. 1)。

例えば、リチウムイオン電池では、充電時において正極の結晶内のLiは、正極から脱離し（正極反応）、電解液内に移動する。一方負極では、電解液内を拡散したLiイオンが、溶媒と混ざり合っている溶媒和した状態から脱溶媒和を行いながら負極内に挿入（負極反応）する。これら充電メカニズムで、正極及び負極反応はバッテリーの種類によって異なるが、イオンの拡散を伴う充放電メカニズムを有しているバッテリーでは、拡散現象は共通で考えることができる。つまり、イオンの拡散をモデル化できれば、共通の充放電モデルを作成することができる。ここで、イ

オンの拡散は、電解液中を拡散する場合や正極や負極の結晶格子内を拡散する場合などがあり、これらを総じてイオン拡散と定義した。

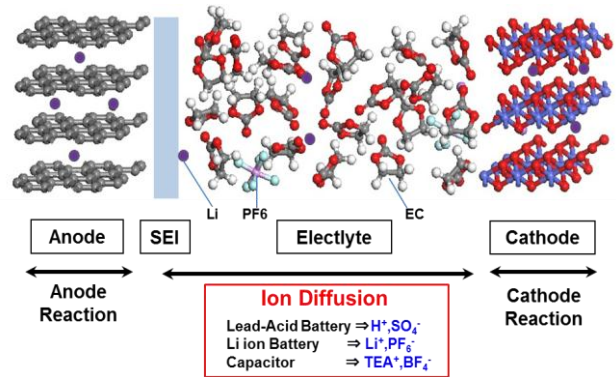
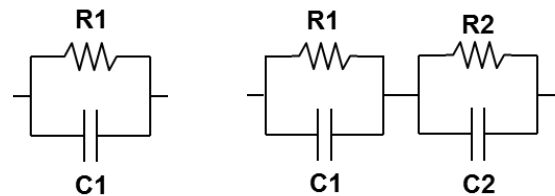


Fig. 1 Battery Charge Mechanism

イオン拡散のモデル化について、一般的に拡散モデルと等価回路モデルの二つの物理モデルがある。拡散モデルは、拡散方程式を用いたものであるが、車載を想定した場合、計算量が多く実装性に課題があると考えた。一方、Fig. 2に示す等価回路（抵抗とコンデンサで構成されたRC回路）は、他のデバイスでも使用されている一般的なプラントモデルであり、マツダにおいても鉛バッテリーにおいて初めて適用した<sup>(1)</sup>。そこで、他のバッテリーについてもRCモデルの適用を検討した。



(a) One RC Circuit Model (b) Two RC Circuit Model

Fig. 2 RC Circuit Model

リチウムイオン電池の充電時の電圧挙動をFig. 3に示す。この結果から、1段RC（以下1RC）よりも2段RC（以下

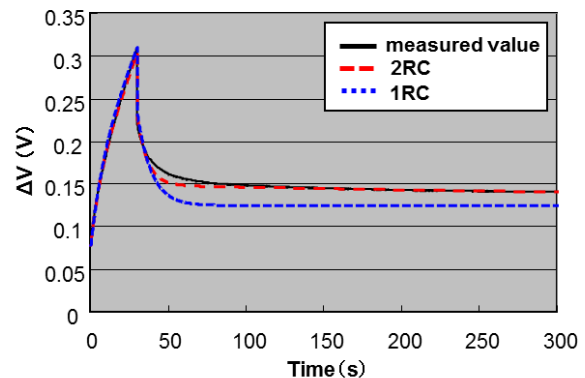


Fig. 3 Battery Voltage Behavior in Charge

2RC)の方が実測値を精度よく再現できることが分かった。これは、実際のバッテリーは、イオンの拡散において「速い拡散」と「遅い拡散」の二つが起きていることが推測され、2RCで電圧挙動を再現するために必要な精度が確保できていることを確認した。

Fig. 4に、2RCモデルを示す。IRドロップと電極反応をR0、二つの速度を有す拡散を二つのRC回路に当てはめた。従って、バッテリーの電圧V<sub>BAT</sub>は、式(1)で表される。

$$V_{BAT} = V_{IR} + EP + OCV0 - \Delta OCV \quad (1)$$

V<sub>IR</sub> : IRドロップ電圧

EP : EP1+EP2 拡散分極電圧

ΔOCV : 充放電に伴うバッテリー起電力の変化分

OCV0 : 充電開始前の電圧

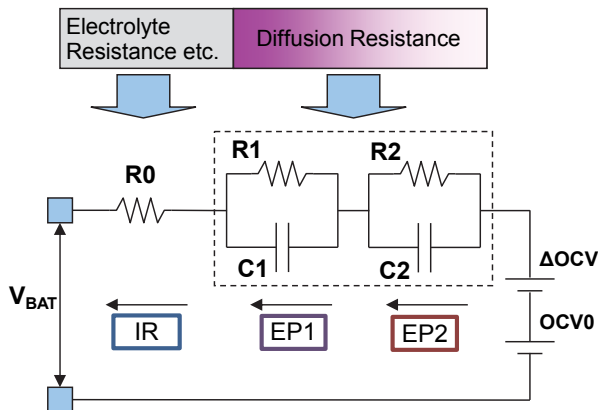


Fig. 4 2RC Circuit Model

等価回路の各パラメータは、Fig. 5に示す矩形波応答を使用して抽出した。

以上のように、イオンの拡散挙動を伴う電圧応答を2RCモデルで表現することが可能となった。

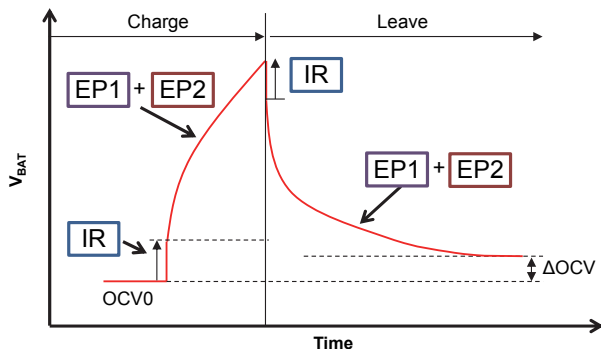


Fig. 5 Rectangular Response for Calculating Parameter

### 3.2 結果

上記の等価回路を用いて、リチウムイオン電池で充放

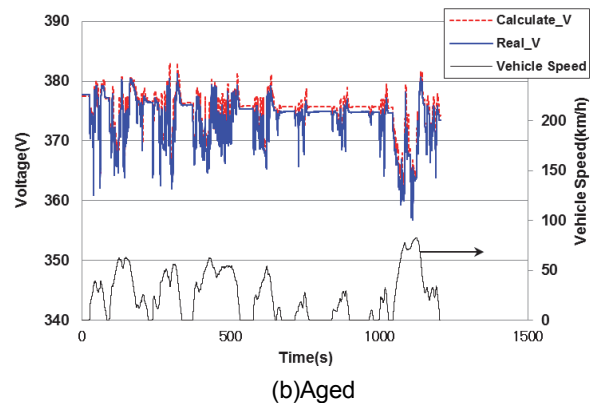
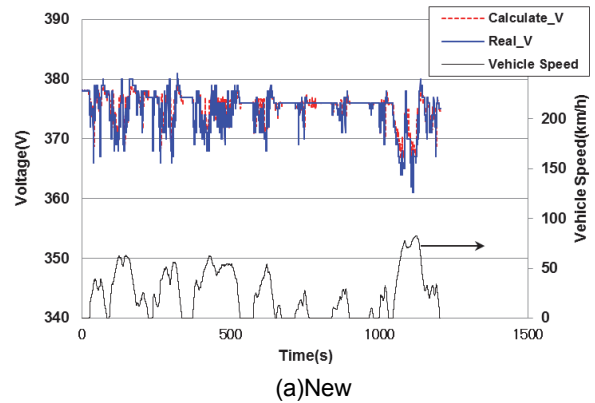


Fig. 6 Comparative Result of 2RC Model and Real Measured Value in Li Ion Battery (JC08 mode)

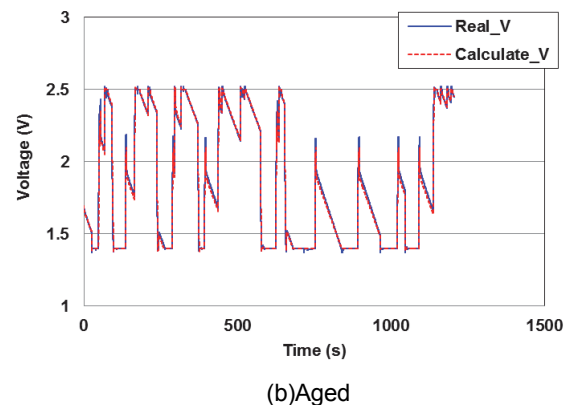
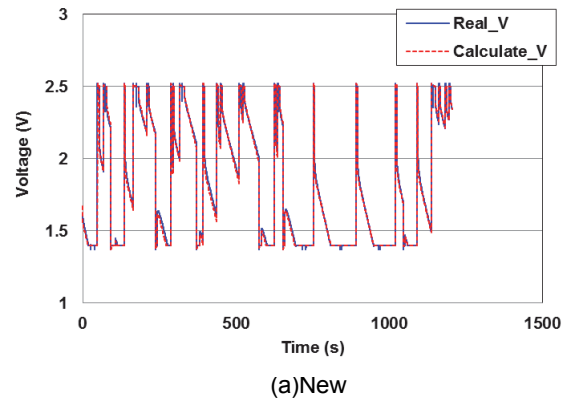


Fig. 7 Comparative Result of 2RC Model and Real Measured Value in Capacitor (JC08 mode)

電シミュレーションを実施した結果をFig. 6に示す。電気自動車を想定し、JC08モードの要求パワー (W) に対する電圧挙動を新品時と劣化時と比較した。劣化時の内部抵抗は、初期比35%増加時のデータを用いた。どちらも3%以内の誤差でシミュレーションが可能であることが分かった。同様に、Fig. 7に減速再生車を想定したキャパシタの充放電シミュレーション結果を示す。劣化時のデータは、内部抵抗が初期比83%増加時、容量維持率80%時を用いた。キャパシタでも、3%以内の誤差でシミュレーションが可能であることが分かった。

以上より、充放電モデルは、イオンの拡散メカニズムをモデル化した2RCモデルを用いることで、鉛バッテリーのみならず、キャパシタやリチウムイオン電池へも適用でき、汎用性の高いモデル作成手法を構築した。

### 4. 劣化モデル

#### 4.1 劣化モデルの考え方

次に、劣化挙動のモデル化について検討を行った。Fig. 8に、リチウムイオン電池の電極/電解液界面の被膜形成イメージを示す。バッテリーの容量低下の主因子は、充放電や保存などの使われ方により、負極に被膜 [=SEI (Solid Electrolyte Interface)] が成長し、SEI 被膜中へのLi 蓄積によるLi損失が主劣化である<sup>(2), (3)</sup>。

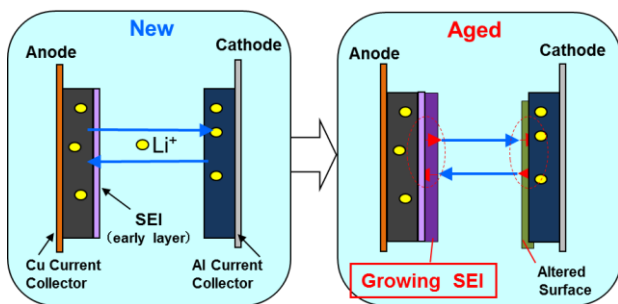


Fig. 8 SEI Formation Behavior at Electrode/Electrolyte Interface

Fig. 9にXPSによる電極表面分析から、初期に対する劣化後のSEI膜厚の測定結果を示す。容量維持率が小さくなるにしたがって、被膜が厚くなることが確認できた。

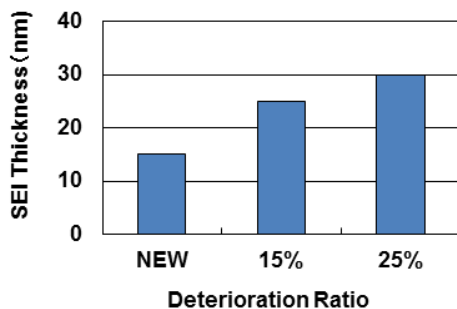
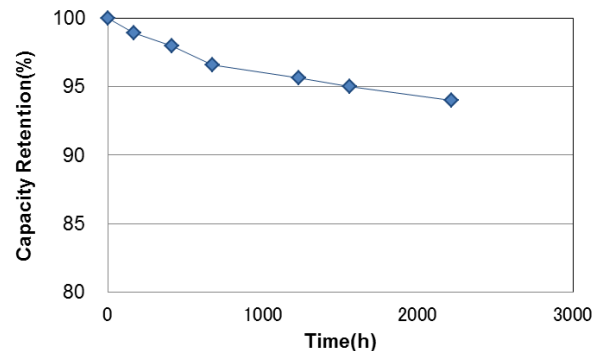


Fig. 9 SEI Film Thickness Measurement (XPS)

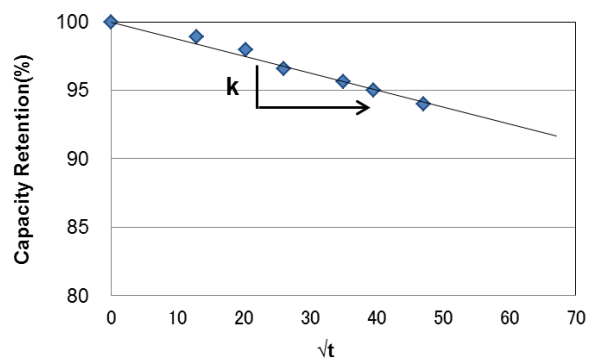
一方、キャパシタにおいては、劣化後に比表面積が減少することが窒素吸脱着測定による比表面積測定から確認された。これは、充放電の副反応として電解液の劣化によって生成した分解生成物が活性炭の細孔に堆積し、比表面積が低下したと推定される。キャパシタにおいては、劣化と被膜形成による比表面積低下に比例関係があり、主要因として劣化を表現できることが分かった。

以上より、リチウムイオン電池とキャパシタの劣化モデルは、SEIのような被膜形成による劣化への影響をモデル化することで、共通のモデルを作成できると考える。

被膜形成に関して被膜の成長反応が、累積試験時間に、常に同じメカニズムで進行するものと仮定して、この被膜の成長速度が被膜の厚さの逆数に比例するという関係式が時間のルート則の根源となる理論モデルである<sup>(3)</sup>。つまり、被膜形成が主劣化のバッテリーの劣化は、ルート則に従うといわれている。



(a) Abscissa Axis=Hour



(b) Abscissa Axis=sqrt(Hour)

Fig. 10 Deterioration Characteristic of Li Ion Battery

一例として、Fig. 10に、リチウムイオン電池の保存時の劣化試験結果を示す。横軸を $\sqrt{t}$ にした場合が、Fig. 10(b)であり、容量劣化が $\sqrt{t}$ に比例して減少することが実験的に確かめられた。容量維持率Yは、以下の式(2)で表せる。

$$Y = -k\sqrt{t} + 100 \tag{2}$$

k: 劣化係数

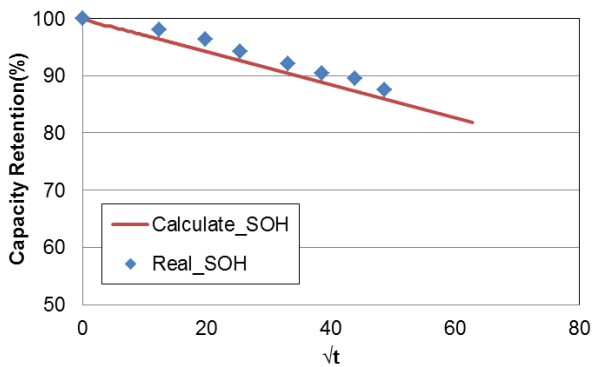
ここで、劣化係数 $k$ は、劣化の反応速度に対応している。サイクル時の劣化でも同様の結果が得られており、上記理論モデルが適用できることを確認した。

次に、劣化係数に対する劣化因子の影響を調べた。主要な劣化因子である、電圧、温度及び電流について調査した結果、電圧はパトラーボルマー則、温度はアレニウス則に従った劣化を示した。一方、電流はバッテリーの種類によりレートや電流積算量のような因子によって影響が異なることが分かった。そこで、これらの関係をベースに、劣化モデルを構築した。

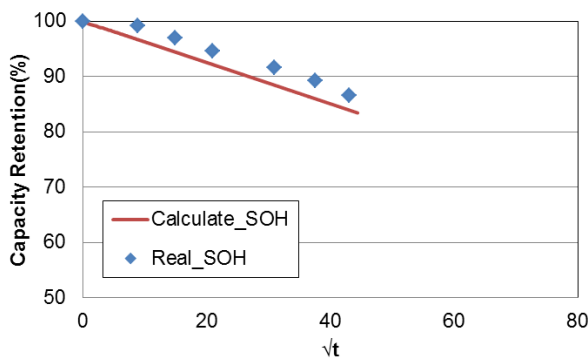
4.2 結果

リチウムイオン電池の劣化シミュレーションを実施した結果をFig. 11に示す。

電気自動車を想定し、複数の劣化因子を加速劣化させた複合試験を用い、走行モードパターンとして、加減速モードAと高速モードBの2つで、セル温度45°Cの場合において実測値と比較した。その結果、両モードでも、3%以内の誤差でシミュレーションが可能であることが分かった。



(a) Mode A



(a) Mode B

Fig. 11 Comparative Result of Deterioration Model and Real Measured Value in Li Ion Battery

同様に、Fig. 12に減速回生車を想定したキャパシタの劣化シミュレーション結果を示す。キャパシタにおいても、実測値との誤差が3%以内でシミュレーションが可能であることが分かった。

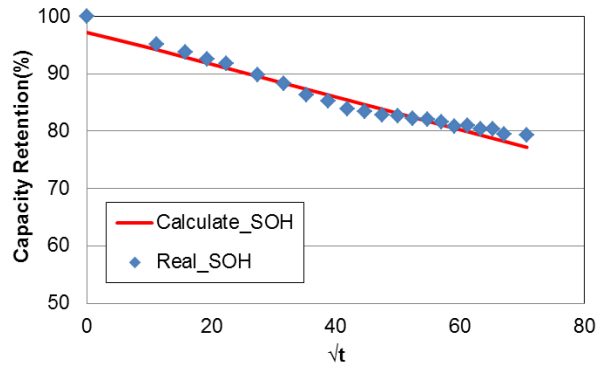


Fig. 12 Comparative Result of Deterioration Model and Real Measured Value in Capacitor

本劣化モデルは、キャパシタでは、電気二重層キャパシタやリチウムイオンキャパシタなど、リチウムイオン電池では、正極違いや負極違いのバッテリーでも適用できることを確認した。

以上より、劣化モデルは、被膜形成メカニズムをベースとしたモデルを用いることで、汎用性の高いモデル作成手法を構築した。その結果、複数のバッテリーでも短期間でポテンシャルを把握することができ、バッテリー開発の早期化に貢献できると考える。

5. おわりに

各バッテリーの充放電挙動や劣化挙動において、その挙動のメカニズムが共通の部分と非共通の部分とを明確にし、共通部分をベースとしたモデルの作成を行うことで、汎用性のあるモデル化技術を構築することができた。このモデルを用いて、モデルベース開発を実施することで、開発の効率化、工数や費用の大幅な削減に貢献できると考える。また、非共通部分のメカニズムと劣化への寄与度を明確にし、個別にモデル化して組み合わせることで更なるモデルの精度向上が実現できると考える。

今後、ますますMBDが重要になってくると考える。バッテリー開発においても適用範囲を拡大させていくとともに、お客様に満足いただく商品へ貢献していくために、モデル化技術の更なる進化を目指していく。

参考文献

- (1) 久米ほか：次世代バッテリーマネジメント技術の開発、マツダ技報, No.28, pp.54-58 (2010)
- (2) 市村雅弘ほか：小型リチウムイオン電池の寿命特性, NTT Building Technology Institute 2005, pp.1-7 (2005)
- (3) 田尾洋平ほか：リチウムイオン二次電池用グラファイト



ト負極上のSEI 被膜の成長過程, GS Yuasa Technical  
Report, No.10-2, pp.8-15 (2013)

■著者■



藤田 弘輝



庄司 明



松井 恒平



宇都宮 隆



楊 殿宇



大路 潔