

Readout

HORIBA Technical Reports

October 2019 No. **53**

特集 2019 堀場雅夫賞

電力および電池を最大限に活用する
効率的な制御のための先端分析・計測技術

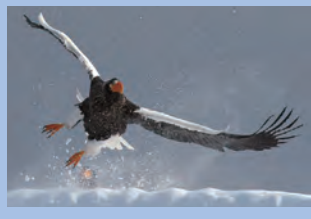


HORIBA

<http://www.horiba.com/jp/publications/readout/>



2019年の堀場雅夫賞では、これから迎える新しい時代のエネルギーとモビリティ産業において必ず必要とされる基盤技術を募集テーマに置きました。受賞者の研究から、今までにない新しい研究視点を持つことの必要性を感じることができるでしょう。



■表紙写真

撮影: 写真家 松井秀雄氏
(二科会写真部 会員)
真冬の北海道に行き、羅臼港から流氷観光船に乗りました。その時、流氷からこちらに向かって飛び立つ大鷲を撮影することができました。長年北海道へ通い、やっと夢が叶った瞬間でした。

■誌名について

誌名 Readout (リードアウト) には、「当社が創造・育成した製品・技術を広く世にお知らせし、多くの皆様に読み取っていただきたい」という願いが込められています。

特集 2019 堀場雅夫賞

電力および電池を最大限に活用する効率的な制御のための先端分析・計測技術

巻頭言

- 4 持続可能なエネルギー社会への貢献に向けて
齊藤 壽一

総説

- 6 電力および電池を最大限に活用する効率的な制御のための先端分析・計測技術
巖 桂二郎

2019 堀場雅夫賞

- 12 対象分野, 受賞者, 審査委員

2019 堀場雅夫賞 受賞者論文 電力および電池を最大限に活用する効率的な制御のための先端分析・計測技術

- 14 次世代の電力網および電気自動車のためのエネルギー貯蔵装置の最適制御
ヨアシュ レブロン
- 18 電気自動車, 電力網およびそれらの相互作用のための機械学習とマルチエージェントシステムに基づく制御および最適化
グエン ディン ホア
- 23 パラメータ感度プロットの開発とリチウムイオン二次電池のモデリングへの応用
丸田 一郎
- 29 太陽光発電を主力とする分散グリッド実現のための水素技術の導入, 制御法の検討
長谷川 馨
- 36 機械学習を用いたリチウムイオン電池充電状態の高精度予測
マティアス ブレインドル

2019 堀場雅夫賞 審査委員 特別寄稿

- 46 リチウムイオン電池の現状と未来
吉野 彰
- 51 モデルベースシステムズエンジニアリング (MBSE) のすゝめ
—「はかる」, 「つなぐ」を考える—
西村 秀和
- 56 潮目を迎えたエネルギー技術
辰巳 国昭
- 62 計測指向情報処理技術と情報処理指向計測技術の共進化
鷲尾 隆
- 68 環境対策として進められているエネルギー分野のふたつのパラダイムシフトの統合について
スコット サミュエルソン

特別寄稿

- 76 系統協調/分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム, 次世代“エネフロー”の開発に向けて
—エネルギービックデータをコアとしたプラットフォームの構築—
伊原 学

特集論文

- 82 バッテリーマネージメントシステムのサイバーセキュリティ
マデリン チー, リチャード ストッカー
- 90 車載リチウム・イオン電池の劣化についての考察
リチャード ストッカー, プニート マサー, アシム マムタズ, ネオフィットズ ロフィティズ
- 97 分光技術を用いたリチウムイオン電池の分析評価
廣瀬 潤

トピックス

- 103 HORIBA FuelCon 社の紹介
バッテリーと燃料電池の評価技術
花木 保成, カーステン クルーガー

コラム

- 110 FuelCon と Herrmann 博士ご夫妻との縁
石田 耕三

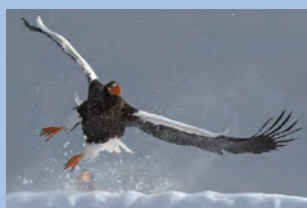
一般論文

- 112 平面型イオンセンサを用いた乳牛の血液中カルシウムイオンの現場における迅速な測定
内海 理伽

新製品紹介

- 117 蛍光吸光分光装置「Duetta」の紹介
小口 真弘, ケリー ジョセフ デーヴィス
- 122 金属硬化プロセス・製鉄プロセス用ガス分析計の開発
FA-5000/5200 シリーズ, MPA-5000, VA-5000WM シリーズ
森田 淳

The theme of 2019 Masao Horiba Award is the fundamental technologies of energy and mobilities industries that are essential to our future. The award-winning research will assure us the importance of new perspective in the research field that have never endeavored in the past.



I visited Hokkaido in the middle of winter and, from Rausu Port, took the sightseeing boat for the drift ice cruise. I was able to shoot the moment a Steller's sea eagle took off from drift ice and flying toward me. I have been to Hokkaido for so many times, but it was the moment that I felt my dream came true.

-Photographer Hideo MATSUI-
(Member of Nikakai Association of Photographers)

Name of the book

This book is named "Readout" in the hope that "the products and technology we have created and developed will be read out and so become widely known".

2019 Masao Horiba Awards Advanced Analytical and Measurement Technologies for Efficient Control System to Maximize the Performance of Electric Power and Batteries Usage

Foreword

- 4** Our Contribution to the Society of Sustainable Energy
Juichi SAITO

Review

- 6** Advanced Analytical and Measurement Technologies for Efficient Control System to Maximize the Performance of Electric Power and Batteries Usage
Keijiro IWAO

2019 Masao Horiba Awards

- 12** Eligible Field of Technology, Winners, and Judges

Feature Article by 2019 Masao Horiba Awards Winners

- 14** Optimal Control of Energy Storage Devices for Future Power Grids and Electric Vehicles
Yoash LEVRON
- 18** Machine Learning based and Multi-Agent System based Control and Optimization Approaches for Electric Vehicles, Power Grids, and their Interactions
Nguyen Dinh HOA
- 23** Development of Parameter Sensitivity Plot and Application to Modeling of Lithium-ion Secondary Batteries
Ichiro MARUTA
- 29** Application and Management of Hydrogen Energy Technology Toward the Solar Cell Based Distributed Electricity Grid
Kei HASEGAWA
- 36** High-Fidelity State-of-Charge Estimation of Li-Ion Batteries using Machine Learning
Matthias Preindl

Guest Forum by 2019 Maso Horiba Awards Judges

- 46** Current Situation of a Lithium Ion Battery and Future
Akira YOSHINO
- 51** Model-Based Systems Engineering (MBSE)
- "To Measure" and "To Connect" -
Hidekazu NISHIMURA
- 56** Trends Changes in Energy Technology
Kuniaki TATSUMI
- 62** Co-evolution of Measurement Oriented Information Processing Technology and Information Processing Oriented Measurement Technology
Takashi WASHIO
- 68** The Merging of Two Environmentally-Driven Paradigm Shifts in Energy
Scott SAMUELSEN

Guest Forum

- 76** Toward the Development of Next Generation "Ene-Swallow" as a Grid Cooperative/Distributed Real Time Smart Energy System
- Information Platform Based on Energy Big Data -
Manabu IHARA

Feature Article

- 82** Cybersecurity of Battery Management Systems
Madeline CHEAH, Richard STOCKER
- 90** Considering Li-Ion Battery Cell Ageing in Automotive Conditions
Richard STOCKER, Puneet MATHUR, Asim MUMTAZ, Neophytos LOPHITIS
- 97** Analytical Evaluation of a Lithium Ion Battery Using Spectroscopic Technology
Jun HIROSE

Topics

- 103** Introduction of HORIBA FuelCon GmbH
Evaluation Technologies for Battery and Fuel Cell
Yasunari HANAKI, Carsten Krüger

Column

- 110** FuelCon and Relationship with Dr. Rudolf Herrmann and Dr. Karin Herrmann
Ishida KOZO

Selected Articles

- 112** On-site Quick Measurement of Calcium Ion in Blood of Dairy Cow with Flat Ion Sensor
Rika UTSUMI

Product Introduction

- 117** Duetta: A New Fluorescence and Absorbance Spectrometer Providing Unique Two-in-One Benefits, Plus High Speed and NIR Fluorescence Detection
Masahiro OGUCHI, Cary Joseph DAVIES
- 122** Development of Gas Analyzer for Metal Hardening Process and Iron Manufacturing Process
FA-5000/5200 series, MPA-5000, VA-5000WM series
Jun MORITA

- 127** HORIBA World-Wide Network

持続可能なエネルギー社会への 貢献に向けて



齊藤 壽一

Juichi SAITO

株式会社 堀場製作所
代表取締役副会長 兼 グループCOO
Executive Vice Chairman &
Group COO
HORIBA, Ltd.

齊藤 壽一

HORIBAは長年自動車を“はかる”ことにより、エンジン・パワートレイン技術の発展、環境負荷の軽減に貢献してきました。2015年7月に英国の自動車研究、試験機関であるMIRAを傘下に入れて以降は、自動車のエネルギー効率、また安全、安心につながる技術への貢献にも取り組みの範囲を広げてきています。

現在、自動車産業は100年に一度の変革の時期を迎えていると言われていています。一つにはまず、安全、安心を革新する自動運転、大量の情報を高速に受発信して交通流の制御や従来にない利便性を実現するコネクテッド機能など、“CAV” (Connected & Autonomous Vehicle) と呼ばれる新世代の自動車の技術開発、実証が急速に進み、実現されつつあります。制御、通信、サイバーセキュリティ対策など様々な新しい技術要素が必要とされ、HORIBAはこれまで培ってきた“はかる”技術とMIRAの技術、経験を融合させ、この変革にいち早く貢献すべくチャレンジを始めています。その一環として、現在MIRAにおいて自動運転テスト用市街地コース、自動駐車試験設備、高速限界挙動試験用コースなどの新設、整備を進めており、さらにサイバーセキュリティや機能安全に対応する一連の技術を“VRES” (Vehicle Resilience) と包括的に定義し、お客様の技術開発支援に着手しています。

さて、自動車産業の変革のもう一つの柱は、言うまでもなく自動車の電動化です。これは単に動力が内燃機関から電気が変わるというだけの単純なものではありません。そもそも、電池で貯めた電気だけを動力源とするEVから、内燃機関とモーターを組み合わせたハイブリッドEV (Electric Vehicle)、さらに燃料電池のような発電機と電池、モーターを組み合わせたEVなど、いわゆる電動車両にもさまざまなタイプが普及しつつあります。いずれの場合も、大電力の効率的な発電、蓄積や入出力の適切な制御が技術課題となっています。加えて電動化によってパワートレインシステムがますます複雑になり、モーター、電池、発電機から機械系メカニズ

ム、電気回路、ソフトウェアという多様なサブシステムとその組み合わせが車両のなかで複雑に絡み合うこととなります。それら全体を同時に最適、かつ安全に実現するための設計パラメータが急増し、電動車両の開発工数を大幅に増大させています。

このような電動化の動きに対して、HORIBAは燃料電池やリチウムイオン電池の試験システムなどを扱うドイツのFuelCon社を昨年グループに迎えました。同社の技術を融合させ、自動車計測事業の基幹工場であるBIWAKO E-HARBORに、燃料電池、バッテリーの「コンポーネント」から「システム」、「車両」の段階まで試験・評価できる設備を新たに整備します。さらにはエネルギー分野とモビリティ分野を統合し、エネルギーインフラまでも含めた様々なこれからの課題に対しても、カリフォルニア大学アーバイン校で計画中のHORIBAモビリティ・コネクティビティ研究所の設立支援を通じ、将来課題の探索や解決のための研究を推進していきます。

本号の特集と関連してご紹介する2019堀場雅夫賞は設立16年目を迎えます。本賞は一貫して、社会の様々な課題解決のために必要とされる地道な学術研究を支援してきました。そして本年は、まさに自動車の電動化とその先に求められるエネルギー革新に貢献する分析・計測を見据えた募集テーマを設定しました。本賞を受賞された新進気鋭の研究者のますますのご活躍を期待するとともに、我々もこの分野へのさらなる貢献に努めたいと思います。

*本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

電力および電池を最大限に活用する 効率的な制御のための先端分析・計測技術

Advanced Analytical and Measurement Technologies for Efficient Control System
to Maximize the Performance of Electric Power and Batteries Usage

巖 桂二郎

Keijiro IWAO

太陽光発電など変動が大きい再生可能エネルギーを使いこなすには蓄電装置と組み合わせた高度なバランス制御が求められます。エンジン／バッテリー／モーターを組み合わせたハイブリッド自動車もエネルギー効率向上のための制御技術が必要です。エネルギーをかしこく「つくる」「ためる」「つかう」ためには、電力システム全体を俯瞰し、需要と供給の時間変動を予測しながら、各ユニットすなわちサブシステム間を協調させる必要があります。2019堀場雅夫賞のテーマは、この複雑なシステムを使いこなすための技術に焦点を当てました。募集の背景とともに、精度とシンプルさを両立させた実用的なモデリングなどの受賞技術を総括します。

Advanced control technologies are required to stabilize power supply and demand especially for grid system using renewable energy such as solar power having large fluctuations. Hybrid electric vehicles combining engine / battery / motor also require system control technologies to improve energy efficiency. In order to “generate”, “store” and “utilize” the energy smartly, it is necessary to coordinate the sub-systems overlooking the behavior of entire system and predicting the time fluctuation of power supply and demand. The theme of 2019 Masao Horiba Awards focused on the technologies to manage this complex system. Along with background of theme, this paper summarize the award-winning technologies such as practical model to realize compatible accuracy and simplicity.

はじめに

2018年4月から経済産業省が進める自動車新時代戦略会議の第2回において、2050年を見据えた長期ゴールとして、“Well-to-Wheel Zero Emission^{*1}”チャレンジが宣言されました。これはCASE^{*2}、MaaS^{*3}など、欧州・米国・中国を中心にした新しいモビリティ産業の覇権争いに、日本も参入する意思表示でもあるようです。この宣言は“世界最高水準の環境性能実現”、“車の使い方のイノベーション”、“世界のエネルギー供給のゼロエミッション化”の3つの柱で構成されており、低炭素・分散・強靱な自動車・エネルギー融合社会の実現、グローバルな環境改善と成長の好循環を目標に掲げています。

*1：「油田から車輪まで排出ガスを出さない」の意

*2：CASE：Connected(コネクテッド)、Autonomous(自動運転)、Shared & Services(シェアリング)、Electrification(電動化)の頭文字を取った、次世代自動車技術の総称

*3：MaaS：Mobility as a Service、新しい移動の概念、自動車などの移動手段を必要とときだけ料金を払ってサービスとして利用する

HORIBAにおいても、この自動車産業の大変革時代を見据え、以下の新事業領域への投資を積極的に実施するとともに、かしこく「つくる」「ためる」「つかう」、エネルギー循環社会の実現に向けた取り組みを強化してきています(Figure 1)。

- 車両開発事業やテストコースを使った車両試験領域へ事業を拡大、さらに自動運転車など次世代モビリティ開発への貢献を目指した英国MIRA社の買収(2015年7月)^[1]
- 英国HORIBA MIRA社に、先進バッテリー開発を支援する試験評価設備を開設(2018年5月)^[2]
- 滋賀県大津市の研究開発拠点に、電動化車両用バッテリーや燃料電池などの評価試験室を新たに建設開始(2018年5月)^[3]
- カリフォルニア大学アーバイン校の、エネルギー分野とモビリティ分野の融合を推進する新研究所の設立を支援する寄付を実施(2018年8月)^[4]
- 電動化車両用バッテリーや燃料電池のテストベンチの製造販売を行う独国FuelCon AG社を買収(2018年10月)^[5]

このような背景のもと2019年の堀場雅夫賞では、これから迎える新しい時代のエネルギーとモビリティ産業において必ず必要とされる基盤技術を募集テーマに置きました。本稿では2019堀場雅夫賞テーマ設定の背景および対象技術分野、また応募結果について概説します。

2019堀場雅夫賞の募集テーマ

【対象テーマ】

電力および電池を最大限に活用する効率的な制御のための先端分析・計測技術

【趣意書】

自動車の電動化によるエネルギー効率の飛躍的な向上や、太陽光や風力など再生可能エネルギーによる発電が再び着目されています。背景としてエネルギーセキュリティに加えて、2050年までにCO₂(二酸化炭素)排出を大幅削減するための国家や社会の強い意思が感じられます。例えば欧州の燃費規制や中国の新エネルギー車促進などの政策は、各国の取り組みとして自動車の電動化に向けた開発やハイブリッドを含む電動車両の普及を後押ししています。また日本やドイツ政府が進める、再生可能エネルギーを貯蔵するための水素活用など、次世代エネルギー技術の開発も急速に進んでいます。

今、自動車産業は大きく技術の潮目が変わってきています。電動車両の普及により将来全ての自動車にモーターとバッテリーが搭載されることは、新たな企業参入の機会を生みます。またモーターの持つ駆動力の制御性の高さは自動運転との相性もよく、新たな魅力品質の開拓にも貢献します。一方で航続距離を伸ばすために、内燃機関や燃料電池が併用されることで、車両を構成するシステムも大幅に複雑化していきます。その結果、全体のバランスや最適化を進めるため、自動車会社の開発工数を大幅に肥大化させていく課題も顕在化してきました。

かしこく「つくる」・「ためる」・「つかう」

エネルギー循環社会にHORIBAの分析・計測技術が貢献

Smart "Generation", "Storage", "Utilization"
HORIBA's analysis and measurement technology contributes to the energy recycling society

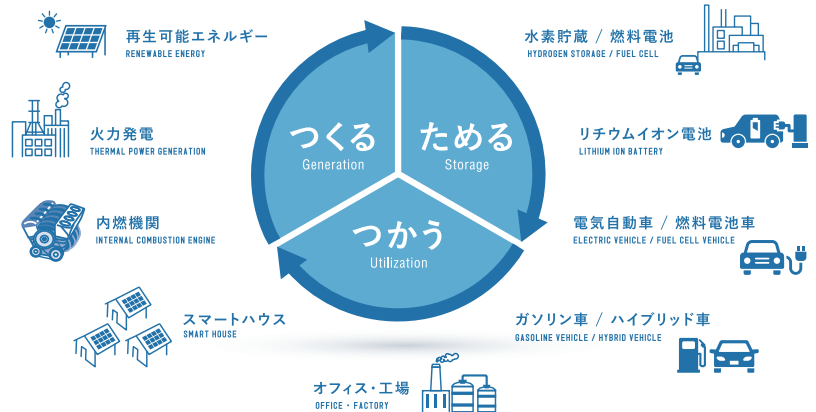


Figure 1 For smart "Generation", "Storage", and "Utilization", HORIBA contributes energy recycling society.

再生可能エネルギーの活用も新たな局面を迎えています。20%以上を再生可能エネルギーが占める九州地域では、エネルギー需給のバランスが崩れ、太陽光発電の出力を遮断せざるを得ない状況が発生しました。また北海道では、地震の影響で、複数の発電所の一箇所が停止しただけで電力システムが不安定になり、連鎖的に全発電所が一斉に停止してしまう事故も発生しました。

このような問題を解決するには、複雑で大規模なシステムの制御が必要になります。そして次の時代を見据えたとき、新しい技術の導入が必要と考えられます。例えば、エンジンを発電機として搭載したシリーズハイブリッド車の開発では、燃費や電費、排気適合、コストの3つの目標要件を、アクセルによる駆動トルクの要求、電池の充放電状態、エンジンの回転数やトルク、また環境温度など多くの設計変数を組み合わせて制御を最適化しなければなりません。この最適化には多くのパラメーターと制御則を組み合わせた実験が必要になっており、効率的な開発も強く求められています。

また再生可能エネルギーの利用でも、天候で大きく変動する太陽光や風力の発電供給に対し、季節単位での気温変化、昼夜の変動、想定外の災害など、変化する需要を予測し、蓄電池や水素エネルギーを活用しつつ、柔軟に応える電力制御の仕組みが益々必要になってきています。加えて自動車の電動化は、自動車そのものが発電や蓄電の役割を果たし、電力制御の一役を担うことも予想されます。

2019年の堀場雅夫賞では、このような背景のもと、次世代のエネルギー、すなわち電力や電池を最大限使い切るための新しい制御の枠組み、またそのための先端分析・計測技術を募集の対象とします。この新しい技術分野の開拓に、意欲的に取り組んでおられる国内外の研究者・技術者の応募を歓迎します。

【対象技術】

(1) **機械、電気、化学と制御を融合させる新しい計測技術**：これからの時代のモビリティやグリッド電源を制御する上で必要となる新しい計測技術に期待します。例えば、電池稼動状態における内部状態を可視化する新しい計測手法や電力需要の予測技術、システム全体を俯瞰的にモニタリングする技術、さらには代表計測点を効果的に探索するための革新的な統計手法にも期待します。

(2) **データサイエンスを活用した新しい制御のための分析技術**：これからの時代のモビリティやグリッド電源のための、物理モデルのみならずデータ駆動による新しいモデリングアプローチやシミュレーション技術に期待します。例えば、インピーダンス法に替わる電池内部状態の精密な推定技術、機械制御と組み合わせ利用が可能な電池充放電時の電気化学反応のモデル化技術、自動車エンジンのIF-THEN場合分け制御における干渉不具合を統計的手法で帰納的に検証する技術、さらには、グリッド電源の電力を安定に、かつ外乱に強く需給バランスを維持する制御技術にも期待します。

また対象技術は共通して産業応用が可能であり、開発工数の低減やエネルギー利用の効率化に資する技術であることを条件にします。

2019堀場雅夫賞の応募結果

2019年2月18日から5月10日までの応募受付期間で合計36件(内14件が海外の大学もしくは公的研究機関から)の応募を頂きました。その内、11件が電気自動車を含めた複数のエネルギー貯蔵手段を利用した系統電力(発電・送配電などの

設備全体の電力)の安定制御技術に関するもの、10件が二次電池や燃料電池の電気化学反応の分析・計測技術に関するもの、7件が電池のシステム同定(数学的ツールやアルゴリズム)を含めたモデリング*4に関するもの、残りの8件は電池の材料開発やモーター・バッテリー・インバーターの独自の制御技術などに関するものでした。

*4：モデリング：複雑なシステムを簡略化した抽象的なモデル(数式)を作成すること

一方で公募における大きな動機の一つであった、車両システムの複雑化を背景にした自動車産業における開発工数の肥大化を解決する最適設計に関する応募はありませんでした。これは、自動車会社および部品会社の設計ノウハウに関わる領域であり、大学および公的研究機関のテーマとしては扱いづらいためと推察されます。

2019年の堀場雅夫賞は3件、特別賞2件の受賞者となりました。トータル5件の中で、3件は系統電力の安定制御に関するもの、2件がバッテリー制御のためのモデリングに関するものでした。

今年の受賞者全員に共通する視点は、車両システムに組み込まれるバッテリーの充放電特性や電力グリッドの蓄電システムなど、複数のサブシステムから構成される複雑なシステム全体を俯瞰し、解決すべき課題の位置づけと輪郭を明瞭にした上で、解決の方向性を示した点が挙げられます。このためには、演繹的に物理モデルを組み立てる視点と、統計解析やデータサイエンスを用いて帰納的にモデルを検証する視点が求められます(Figure 2)。例えば太陽光発電など再生可能エネルギーの利活用には、分単位、日単位、年単位で変動する需要に柔軟に対応するエネルギー貯蔵サブシステムが必要です。このサブシステムに求められる容量や性能などの必要条件のみならず、システム全体のコスト最適化など十分条件も併せて検討するなど、社会実装する上で重要な電力システム全体の必要十分条件について検討されていました。また、システム制御のためのモデリングに関して、単にモデルの精度を高めるだけではありません。システム全体を俯瞰し代表パラメーターを明確にし、必要十分な範囲でモデル精度とシンプルさをバランスさせるモデル設計手法など、これからの産業応用が大いに期待される技術もありました(Figure 3)。

言い換えると「必要以上に無駄な労力はかけない制御モデルの設計手法」、「系統電力に迷惑をかけないためのサブ電力システムの設計指針」など、複雑化したシステムのサブシステム間の関係性を最適化する新しいエンジニアリング領域を開拓した若い研究者が受賞されました。

おわりに

電動車両の普及や自動運転の実用化、さらにそれらが電力システムにつながることで社会全体のエネルギー効率を高める、そんな時代が目前に近づいてきたと考えます。実現のためには複雑化するシステムを使いこなす技術の開発が不可欠です。2019年の堀場雅夫賞は、この新しい時代を切り拓く、若い研究者をエンカレッジすることを目的に、テーマを「電力および電池を最大限に活用する効率的な制御の

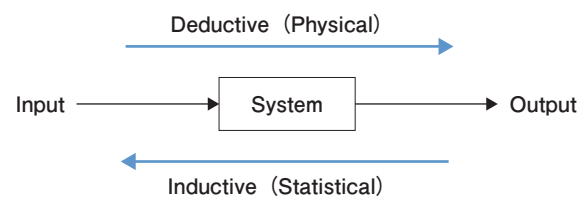


Figure 2 Modeling approach

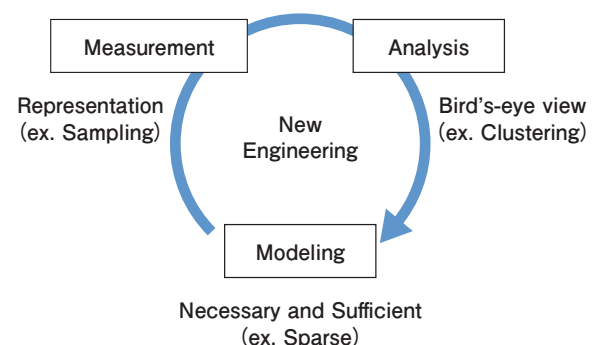


Figure 3 Necessary and sufficient modeling for new engineering

ための先端分析・計測技術」と置きました。多くの研究者から応募頂いたことに感謝致します。応募頂いた研究者の方々に共通する新しい時代の視点は、「鳥の眼」、「虫の眼」、「魚の眼」をあわせて研究することの重要性でした。見えないものを見えるようにする従来からある研究視点「虫の眼」のみならず、その研究が全体システムの中でどのような位置関係にあるか冷静に見極める「鳥の眼」、さらにシステム全体のダイナミクスつまり時間変化を見極める「魚の眼」、3つの視点の重要性に改めて気づくことができました(Figure 4)。これからの時代を担う若い研究者の益々の活躍に期待致します。

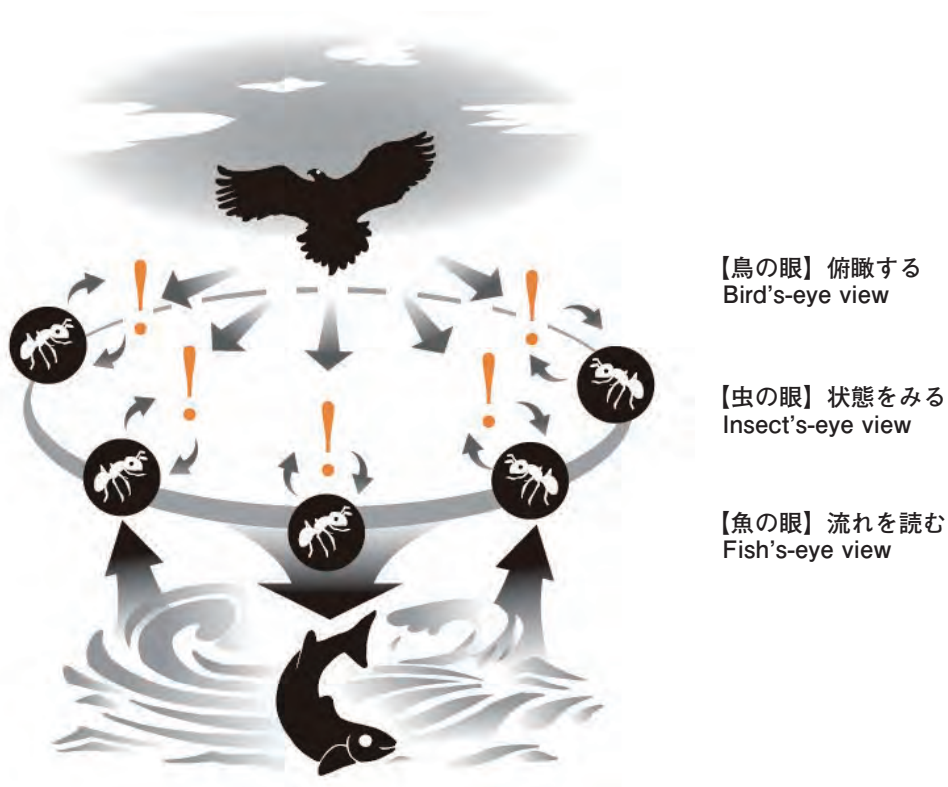


Figure 4 Three points of view for new engineering

*本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] <http://www.horiba.com/jp/corporate-news/news/article/mira-ltd-39541/>
- [2] <https://www.horiba-mira.com/facilities/advanced-battery-development-suite-abds/>
- [3] <http://www.horiba.com/jp/corporate-news/news/article/54291/>
- [4] <http://www.horiba.com/jp/corporate-news/news/article/54933/>
- [5] <http://www.horiba.com/jp/corporate-news/news/article/fuelcon-ag-55977/>



巖 桂二郎

Keijiro IWAO

株式会社 堀場製作所
自動車グローバル戦略室 電動化ビジネスオーナー
博士(工学)
Business Owner
Automotive Global Business Strategy Office
HORIBA, Ltd.
Ph.D.



堀場雅夫賞について

堀場雅夫賞は、国内外の大学または公的な試験研究機関において、分析・計測およびその応用に関する科学技術分野で顕著な業績を挙げつつある研究者・技術者を奨励表彰するものです。

対象分野

電力および電池を最大限に活用する効率的な制御のための先端分析・計測技術



堀場雅夫賞受賞



テクノオン-イスラエル工科大学 電気工学部
助教

ヨアシュ レブロン 氏

【受賞研究題目】

次世代の電力網および電気自動車のためのエネルギー貯蔵装置の最適制御



九州大学 カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所
助教

グエン デイン ホア 氏

【受賞研究題目】

電気自動車、電力網およびそれらの相互作用のための機械学習と
マルチエージェントシステムに基づく制御および最適化手法



京都大学大学院 工学研究科 航空宇宙工学専攻
准教授

丸田 一郎 氏

【受賞研究題目】

パラメータ感度プロットの開発とリチウムイオン二次電池のモデリングへの
応用

特別賞受賞



東京工業大学 物質理工学院応用化学系
助教

長谷川 馨 氏

【受賞研究題目】

太陽光発電を主力とする分散グリッド実現のための水素技術の導入、
制御法の構築



コロンビア大学 電気工学科
助教

マティアス プレインドル 氏

【受賞研究題目】

データ駆動型モデリングとリチウムイオン電池特性の評価

審査委員会 (敬称略, 順不同)

審査委員長	吉野 彰	技術研究組合リチウムイオン電池材料評価研究センター (LIBTEC) 理事長
海外審査委員	スコット・サミュエルソン	UCI機械・航空宇宙工学部 APEP 教授
審査委員	辰巳 国昭	産業技術総合研究所 イノベーション推進本部 上席イノベーションコーディネータ
	西村 秀和	慶應義塾大学大学院 システムデザイン・マネジメント研究科 教授
	鷺尾 隆	大阪大学 産業科学研究所 教授
	巖 桂二郎	株式会社 堀場製作所 自動車グローバル戦略室 電動化ビジネスオーナー
	吉村 紗矢香	株式会社 堀場製作所 カスタム製品開発部



Optimal Control of Energy Storage Devices for Future Power Grids and Electric Vehicles

次世代の電力網および電気自動車のためのエネルギー貯蔵装置の最適制御

Yoash LEVRON

ヨアシュ レブロン

Two challenges of modern power systems are the increasing integration of renewable energy sources and the increasing use of electric vehicles. A key enabling technology related to both these challenges is energy storage. However, the field of energy storage itself poses significant research questions, ranging from the search for new and better materials to advanced control algorithms. The research reported herein explores new approaches for optimal control of storage devices. One paper studies the optimal energy management strategy in complex networks with storage devices. Two other papers introduce the “shortest path” optimization technique. These concepts allow simple planning of the stored energy, and enables reliable and efficient operation of power systems and electric vehicles.

最近のパワーシステムでは、再生可能エネルギー源との統合拡大と電気自動車の導入拡大という二つの課題があるが、これら二つの課題のいずれにも有効な解決策がエネルギー貯蔵技術である。しかしながらエネルギー貯蔵技術自体の分野においても、新素材開発・材料改良から先進的な制御アルゴリズムにおよぶ重要な課題を解決しなければならない。本論文で紹介する研究は貯蔵素子の最適制御への新たな研究手法を開拓するものである。貯蔵デバイスからなる複雑なネットワークにおけるエネルギー管理の最適化に関する論文1件と、他に「最短経路法」による最適解法について解説する論文2件を示そう。これらの概念によってエネルギー貯蔵システムの設計が簡素化され、電力供給システムと電気自動車を高信頼性かつ高効率で運転することが可能となる。

Introduction

Over the past few years storage technologies are slowly emerging as an essential component of modern power systems. Batteries in particular are being used in increasing numbers both in electric vehicles and in conjunction with renewable energy systems, due to their falling costs. A key question is what will be the main function of storage systems, since they may be used for different tasks such as reducing the peak power generation, shifting energy from one time to another, regulating the frequency, stabilizing voltages, or trading energy.

Another question is how to locate energy storage devices in the grid, and how to organize energy storage systems on a large scale. Two leading concepts are the decentralized approach, which calls for numerous distributed storage systems, and the centralized approach, in which

relatively large storage devices are located in key points within the grid. Decentralized storage systems will be probably owned by private consumers and operated for maximal profits, whereas centralized storage systems will be probably owned by the utility, and operated to stabilize the power system as a whole. Each of these approaches has advantages and disadvantages. For instance, while the first approach enables high modularity and flexibility, the second offers the advantages of scale, and allows tight control by the system operator. The future is wide open, and these issues are currently far from being resolved.

One of the primary drivers for the growing interest in storage systems is the increasing use of renewable energy sources. A common claim is that renewable sources such as wind and solar are intermittent and unreliable, and thus require storage systems to be useful in a utility system. To address this challenge one idea is to use storage devices

for energy balancing: surplus energy is stored when the power demand is low, and used later when “the wind is not blowing, or the sun is not shining”. A common claim is that storage systems are crucial if the penetration level of renewable sources exceeds a certain threshold. This threshold however depend on many factors, vary from one system to another, and is currently not sufficiently well understood. On shorter time scales, fast reacting storage devices are crucial for frequency and angle stability. Since renewable energy sources and other power electronics based devices have little inertia, they may jeopardize the grid stability and overall dynamic behavior. This problem may be mitigated by fast reacting storage systems that are installed alongside low-inertia sources.

A well known challenge is how to optimally control storage devices to maximize the efficiency or reliability of a power system. As an example, for a grid-connected storage device the objective is usually to minimize the total cost, the total fuel consumption, or the peak of the generated power, while operating the device within its limits. The problem in this case is to decide how much energy should be stored, and when to store it. Such optimal control problems are generally hard to solve due to their high numeric complexity, and since in order to find an optimal solution one has to compute the stored energy at each and every point in time. In addition such optimization problems are usually not convex, either since the objective function is not convex, or since it is not defined over a complex set. As a result gradient-based optimization methods are usually inefficient, and tend to converge to local minima.

The dynamics and operating limits of the storage device may also complicate the solution process. For instance, in simple problems an optimal solution may be found according to Pontryagin’s minimum principle. This approach often yields solutions that can be implemented in real-time, but may be inefficient for complex constraints or dynamic equations. In addition, dynamic programming algorithms can typically locate a globally optimal solution, but can practically handle only a limited number of state variables. In peak-shaving or energy shifting applications load forecasting may also pose a major challenge. While several works avoid this problem by assuming that the load may be estimated with sufficient accuracy, others propose optimal solutions which also forecast the load.

Integration of Storage Devices in Modern Power Systems - a Short Introduction

Currently two grand challenges in the power system field are the increasing integration of renewable energy sources

and the increasing use of electric vehicles. It is well known within the power system community that a key enabling technology related to both these challenges is energy storage. However, the field of energy storage itself poses significant research questions, ranging from the search for new and better materials to advanced management and control algorithms.

Storage devices come in various sizes and serve different needs. For instance, the term grid-scale energy storage encompasses a number of different technologies such as pumped hydroelectric storage, compressed air storage, batteries, flywheels, superconducting magnetic energy storage, and super-capacitors. These technologies are also characterized by many different parameters such as capacity, energy density, power density, efficiency, lifetime, cost, etc. Common energy storage technologies include:

- *Mechanical*: hydroelectric energy storage (pumped storage)1, flywheels, compressed air, thermal storage;
- *Electrochemical*: rechargeable batteries, flow batteries, fuel cells;
- *Electrical*: capacitors, inductors, superconducting magnetic coils.

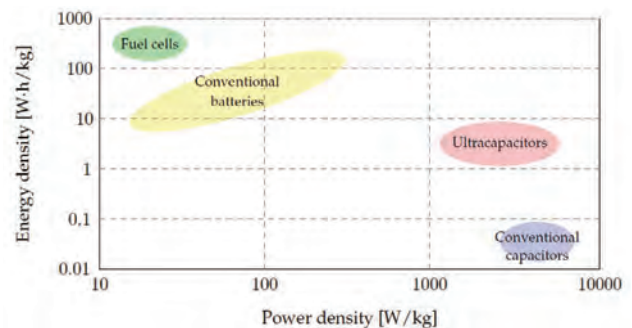


Figure 1 Energy density vs. power density

Storage devices with high power density are crucial for stability of electric power systems. A classic example is the kinetic energy stored in the rotors of synchronous generators. This kinetic energy supports instantaneous changes in the load, and is essential for regulating the grid frequency. Today, one possible challenge associated with renewable energy integration is the low rotational inertia of renewable energy sources, which in several cases may lead to stability problems. To address this challenge the total system inertia may be increased by means of additional storage devices.

On the other hand, storage devices with high capacity are mostly used for energy shifting and energy balancing.

The main idea is to store surplus energy at times when the power demand is low, and then to use it when the main source cannot supply the energy needed, or when generation is more difficult or expensive. Typical applications in power systems include:

- **Energy balancing, Load leveling, or Peak shaving.** In electric power systems the load is constantly varying. Storage devices may be used to shift generation from times of peak load to off-peak hours. This lowers the peak of the generated power, and improves the overall system efficiency.
- **Renewable energy integration.** Renewable sources provide variable power that is not always matched to the load. If the energy generated by renewable sources cannot be consumed immediately it can be stored and used later. Energy storage technologies seem to be essential for large-scale integration of renewable sources.
- **Energy trading.** Storage devices enable to buy energy at a low price, and then to sell this energy at a higher price. In addition to generating profit this also helps to match the power supply to the power demand, and stabilizes the energy cost.
- **Emergency preparedness.** Storage devices may supply energy in case of a malfunction in the generation or transmission systems. This function is vital for sensitive facilities such as hospitals, military bases, etc.

New Approaches for Managing Storage Systems in Future Grids

The research reported herein explores new approaches for large-scale utilization of energy storage devices in power grids, and the impact of these devices on possible integration of renewable and distributed sources of energy. Consider a general system consisting of generators, storage devices and loads, in which the generated power can be controlled. In such a system it is necessary to decide at every moment how much energy should be generated, and how much energy should be stored. The best mix is found by solving an optimization problem, in which the objective is to maximize the efficiency or to minimize the overall cost.

Paper^[1] studies the optimal energy management strategy in complex networks with storage devices. The solution is based on dynamic programming, and

utilizes the Bellman equation. This paper received considerable attention in the power systems community since it is the first paper showing the optimal energy management strategy for a storage device in a complex power network. The main idea is to view the energy stored in the device as a resource that should be optimally distributed within different time slots and throughout the network. This view enables to formulate the optimal control problem as an allocation problem, which is naturally solved using dynamic programming. Still a major challenge is how to handle the nonlinear power flow equations describing the grid. The paper shows an efficient numerical technique to do so for one or two storage devices.

Papers^[2, 3] explore the usage of storage devices for energy shifting and energy balancing. The main contribution of these works is the “shortest path” optimization technique: the optimal generated energy must follow the shortest path within two bounds set by the load profile, and the device capacity. This concept eventually allows simple planning of the optimal generated energy, and enables designers to estimate the required storage capacity for a specific application based on a graphical design procedure. Examples are shown in the following figures.

The optimal generated energy is the shortest path between the bounds, and the generated power is “as constant as possible”. This intuitive result shows that for high capacity values the generated power is approximately equal to the average load, and for low capacity values it is

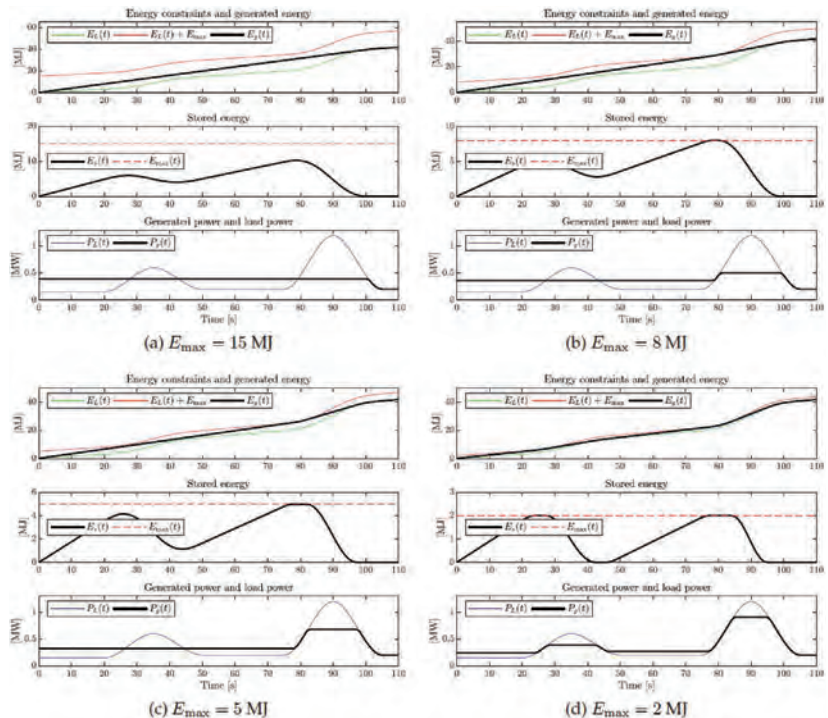


Figure 2 The optimal generated energy $E_g(t)$ is the **shortest path** between the bounds, and the generated power $P_g(t)$ is “as constant as possible”. For high capacity values $P_g(t)$ is approximately equal to the average load, and for low capacity values $P_g(t) \approx PL(t)$.

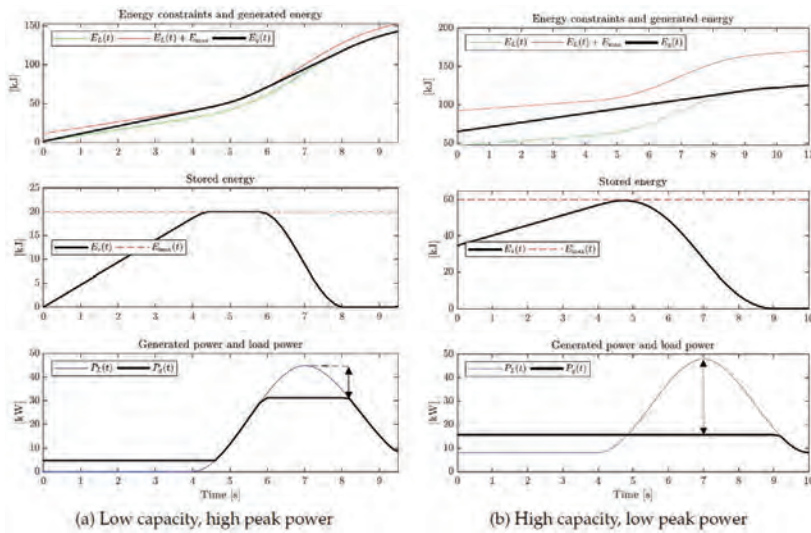


Figure 3 Optimal peak shaving strategy in a hybrid electric vehicle.

approximately equal to the load. Therefore, the shortest path method allows simple planning of the optimal generated energy, and enables designers to estimate the size of the storage device for a specific application. Paper^[3] in the list above provides an optimal energy management strategy that minimizes the peak of the generated energy. The solution stems from the shortest path principle, as illustrated in the following figure:

We are currently trying to extend these results by showing how the shortest path idea relates to Pontryagin’s minimum principle. Such a link may be theoretically interesting since it may demonstrate that the intuitive shortest path method can be extended to handle more complex systems. Another possible result is a low-complexity algorithm for calculating the shortest path when considering the uncertainty in the load profile.

Conclusions

A well-known challenge is how to optimally control storage devices to maximize the efficiency or reliability of a power system. As an example, for a grid-connected storage device the objective is usually to minimize the total cost, the total fuel consumption, or the peak of the generated power, while operating the device within its limits. The problem in this case is to decide how much energy should be stored, and when to store it. Such optimal control problems are generally hard to solve due to their high numeric complexity, and since in order to find an optimal solution one has to compute the stored energy at each and every point in time.

The overall aim of the reported research is to better understand management strategies of storage devices in autonomous systems and in future grids. Two obvious

applications are the ability to integrated renewable energy sources into existing power grids, where storage is expected to be a key technology, and to enable improved energy management in electric vehicles. Paper^[1] studies the optimal energy management strategy in complex networks with storage devices. The solution is based on dynamic programming, and shows an optimal energy management strategy for a storage device in a complex power network. The main idea is to view the energy stored in the device as a resource that should be optimally distributed within different time slots and throughout the network. Papers^[2, 3] explore the usage of storage devices for energy shifting and energy

balancing. The main contribution of these works is the “shortest path” optimization technique: the optimal generated energy must follow the shortest path within two bounds set by the load profile, and the device capacity. This concept eventually allows simple planning of the optimal generated energy, and enables designers to estimate the required storage capacity for a specific application based on a graphical design procedure.

References

- [1] Y. Levron, J. M. Guerrero, and Y. Beck, “Optimal power flow in microgrids with energy storage,” *IEEE Transactions on Power Systems*, 28 (3), pp. 3226-3234, Aug. 2013.
- [2] Y. Levron and D. Shmilovitz, “Optimal power management in fueled systems with finite storage capacity,” *IEEE Transactions on Circuits and Systems I*, 57 (8), pp. 2221-2231, Aug. 2010.
- [3] Y. Levron and D. Shmilovitz, “Power systems’ optimal peak-shaving applying secondary storage,” *Electric Power Systems Research*, 89, pp. 80-84, Aug. 2012.



Yoash LEVRON

ヨアシュ レブロン

Assistant Professor
Faculty of Electrical Engineering
Technion - Israel Institute of Technology.
Ph. D.

Machine Learning based and Multi-Agent System based Control and Optimization Approaches for Electric Vehicles, Power Grids, and their Interactions

電気自動車, 電力網およびそれらの相互作用のための機械学習とマルチエージェントシステムに基づく制御および最適化法

Nguyen Dinh HOA

グエン ディン ホア

Paradigm shifts on energy generation, consumption, storage, and trading, due to the deep penetration of renewable and distributed energy resources, e.g., solar, electric vehicles, etc., pose significant challenges to the operation and management of current and future energy systems. A solution proposed in this research is a unified framework based on multi-agent system and machine learning for the optimization, control, and prediction of energy networks at different levels to cope with uncertainties and random perturbations. Thus, the stability, robustness, and resiliency of energy systems are enhanced in addition to their autonomy.

太陽光, 電動化車両といった再生可能で分散型のエネルギー資源への依存度が今後ますます高くなると考えられる。これによって, エネルギー生産/消費/蓄積/輸送においてパラダイムシフトが起こり, 現在および未来のエネルギーシステムの操作と管理においては, 今までにない大きな挑戦が求められる。本研究で提案する解決策は機械学習とマルチエージェントシステム^{*1}に基づく統一した枠組みであり, ささまざまなレベルで, 不確かでランダムに受ける影響に対処するために, 電力網を最適化し, 制御し, そして予測する手法である。これによって, エネルギーシステムの自律性だけでなく, 安定性, 頑強性, そして復元力が強められる。

*1: マルチエージェントシステム: エージェントとは管理したい対象毎に設けられる機能単位。マルチエージェントシステムは, そのエージェントが他のエージェントと連動する分散処理システム。

Introduction

Most parts of current electric power grids around the globe were built decades ago using the top-down approach, i.e., power is generated at central generation units located far away from end-users, which is then transmitted through very long transmission and distribution lines, and hence, incurs much power losses and construction, maintenance, and expansion costs. Moreover, conventional power plants utilizing fossil-based resources are polluted causing severe problems to the environment and society. Fortunately, recent advances on harvesting renewable energy have opened up other clean ways of power generation, and the developed information and communication technology (ICT) have made the communication between different grid components possible. These lead to the concept of smart grid. However, the

large integration of renewable energy to the grid creates crucial problems, e.g., frequency and voltage instability, because of the fluctuating and intermittent nature of renewable sources. Additionally, the central deployment of renewable generation, e.g., solar farms and wind farms, requires a large area, a high construction cost, and is not always accepted by the public. Therefore, simply integrating renewable and distributed energy resources into the current grids built based on a top-down approach is not an appealing solution.

Multi-agent system (MAS) provides a powerful framework for hierarchical, decentralized system operation and management where no centralized entity is needed and agents coordinate themselves to achieve their own local goals as well as the global targets for the whole multi-agent system.^[1-3] Different parts of an energy grid or an

electric vehicle (EV) at different system levels can be considered as agents. For example, each generation unit and each household in an electric power grid can be regarded as an agent. On the other hand, each cell in a battery bank or in a fuel cell stack can also be cast as an agent. Then one global target of the grid is to guarantee the supply-demand balance so that the grid frequency is stabilized, and a local aim of one household is to have enough energy at any time, while the local purpose of a battery pack or fuel cell stack is to achieve the equal state-of-charge (SoC) or energy level of all battery cells or all fuel cells.

Moreover, in the transforming energy grids where much more renewable energy resources and EVs will be integrated, reverse power flows from excess renewable energy or from EVs to the bulk grids cause severe problems on the grid voltage and frequency. Therefore, in parallel with the enhancement and expansion of the existing grid infrastructure and markets, new bottom-up forms of energy grids and markets should be developed. Particularly, localized and decentralized energy grids and markets are promising candidates, for instance peer-to-peer (P2P) microgrids (see Figure 1 for illustration) equipped with distributed ledger technologies such as blockchains. These P2P microgrids can be established within local communities in which energy is generated and consumed by prosumers with rooftop photovoltaic (PV) panels or small-scale wind turbines, EVs, fuel cell based combined heat and power (FC-CHP) units, etc. Then surplus energy is sold directly to consumers inside such P2P microgrids without going back to the main grid. In these scenarios, P2P microgrids can also be cast as MASs.

The mentioned concept and description of MAS above is exhibited in Figure 1. Here, an energy system at a specific scale is represented by a cyber-physical system in which the energy exchange is conducted at the physical layer, whilst the information exchange between agents is

made at the cyber layer. The physical measurements will be utilized at the cyber layer for the prediction and optimization of energy demand and supply executed by embedded algorithms in each agent. Consequently, control commands will be sent back to the physical layer to adjust the outputs of demand and supply units accordingly.

Multi-Agent System for Energy Grid Optimization and Control

As the future energy grids will become more and more decentralized, and simultaneously energy markets will be liberated where consumers have right to choose which sources of energy to buy and generators can select where to sell energy to, current centralized control and management approaches will no longer be valid. Instead, distributed control and optimization methods need to be utilized. As such, MAS-based optimization and control approaches will be suitable for decentralized operation and management of energy grids, where portions of grids will act as agents, at different scales.^[4-9]

In [4] and [7], the so-called dynamic social welfare maximization (DSWM) problem was investigated in which the benefit of not only energy generators but also energy consumers are maximized. Moreover, optimal real-time energy prices were derived by all generators and consumers, based on which they adjust their energy outputs correspondingly. In those researches, each generator or consumer is treated as an agent, and decentralized alternating direction method of multipliers (ADMM) approaches were proposed to solve the DSWM problem in parallel by each agent. Thanks to those ADMM approaches, agents can simultaneously attain their own objectives of benefit maximization and local constraints satisfaction, while sharing privacy-protected information with some other agents to achieve the global target of supply-demand balance. Further, a novel control structure was proposed in [4] to handle the disconnected communication between agents in presence of cyber-attacks, where a supervisory unit measures different energy prices in different areas due to cyber-attacks and then calculate the global optimal price to broadcast back to all agents in all areas. Hence, the grid resiliency is guaranteed. The proposed structure and the simulation results for the MAS-based ADMM optimization approach applied to a modified IEEE 39-bus system in [4] are depicted in Figure 2.

A similar ADMM approach to that in [4] was also employed in [9] for the optimal energy management in microgrids with rooftop PV prosumers and EVs. Consequently, the optimal energy price inside the

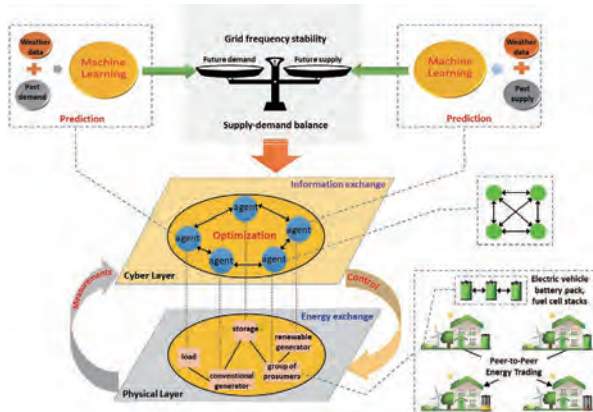


Figure 1 Illustration for the proposed machine learning based and multi-agent system based control and optimization approaches for energy grids

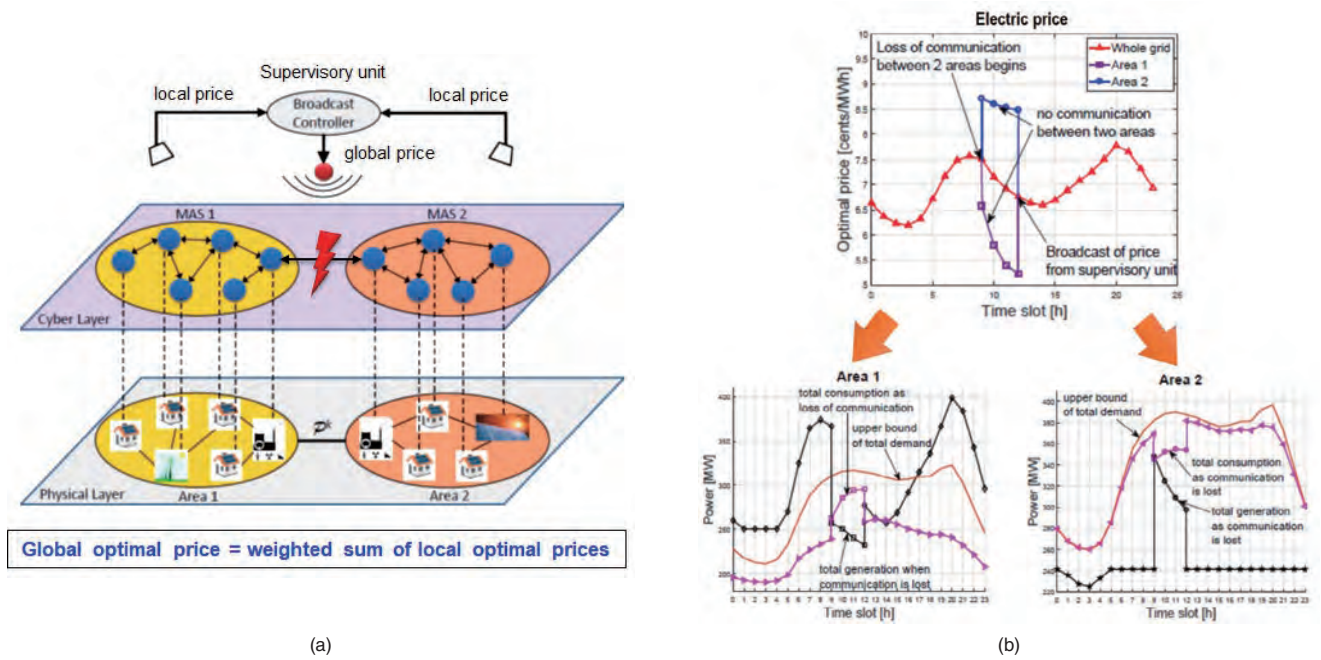


Figure 2 (a) Price regulation mechanism for grid recovery under cyber-attacks proposed in [4], and (b) The optimal electric price, power generation and consumption in two areas in the grid

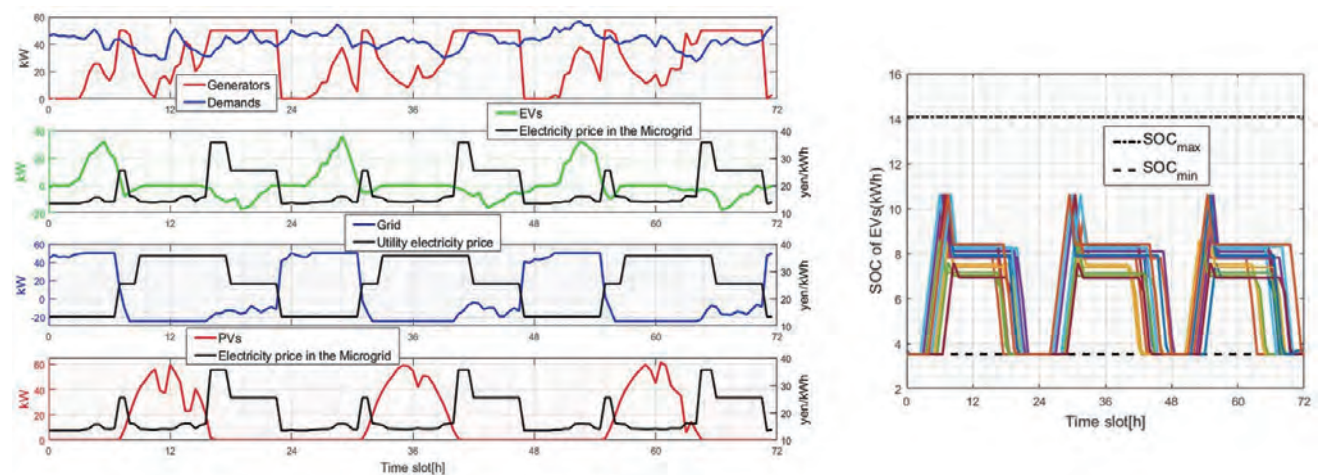


Figure 3 Behaviors of agents in a microgrid under the proposed decentralized ADMM approach^[9]

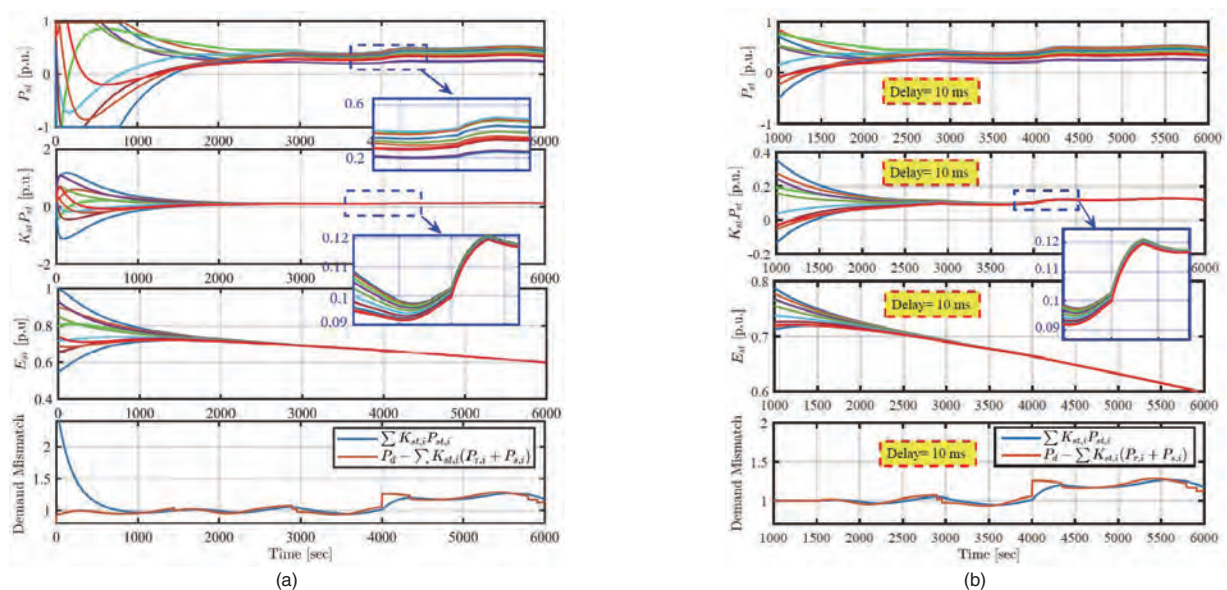


Figure 4 Distributed BESSs responses under: (a) variant wind speed and no time delays, (b) invariant wind speed and time delays

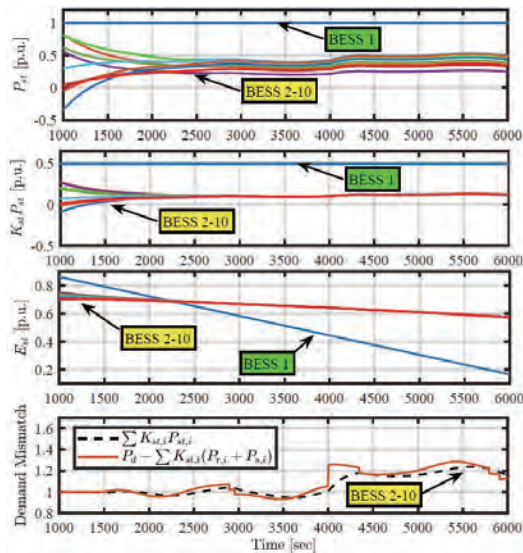


Figure 5 Distributed BESSs responses under communication failure

considering microgrid as well as the optimal scheduling of diesel generators, household consumption, and EV charging/discharging for a 3-day period are displayed in Figure 3.

On the other hand, the consensus theory for MASs were employed in the control designs in [5], [6], [8] for distributed battery energy storage systems (BESSs) taking into account the heterogeneity of BESSs rated capacities and inter-BESS communication delays. The advantages of distributed or on-site BESSs are to enhance the storage functionality and flexibility, since the storage function of a centralized BESS could be lost if a single battery pack is broken. Additionally, distributed BESSs can support the active and reactive power control through which the frequency and voltage regulations are obtained. The key idea here is to control distributed BESS such that they equally share their active and reactive powers depending on their rated capacities and charging/discharging rates, using consensus theory for MASs. The simulation results for a wind farm with 10 wind turbines equipped with 10 on-site BESSs in [8] are exhibited in Figure 4 and Figure 5.

Machine Learning for Prediction of Energy Demand and Generation

To build up the so-called super smart society or society 5.0, the guarantee of

enough energy at any time is a critical requirement, because any lack of energy will lead to severe problems to the society and economy. Hence, the prediction of energy demand including electricity demand is an essential problem for almost all parts in energy grids, e.g., power utility companies, smart homes, EVs, etc., for suitably scheduling and balancing their energy generation and consumption. It then turns out that machine learning (ML) based methods could provide good solutions for improving the accuracy of supply-demand balance.^[10] Particularly, ML techniques can be used for predicting both renewable output power generation and load power demand, and can be run at different time scales, from real-time, hours to days, weeks, months, and seasons ahead. As a result, the power scheduling for conventional generation units such as thermal or hydroelectric ones can be appropriately planned in both short-term and long-term periods.

In order to do run ML methods, measurement data of historical weather conditions and historical data of renewable output power as well as power demand are needed for training parameters of ML models. Afterward, the obtained parameters will be employed for the prediction of future renewable output power and future power demand based on weather forecast data. The advantage of ML methods is on their ability to achieve reasonably accurate predictions in spite of inexact input data, hence the better supply-demand balance can be obtained.

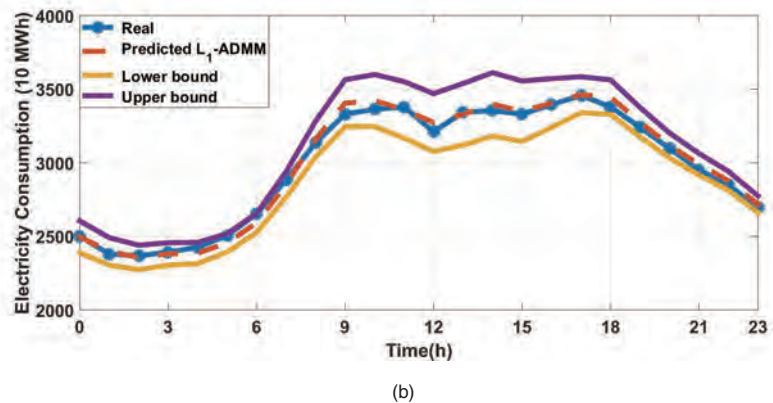
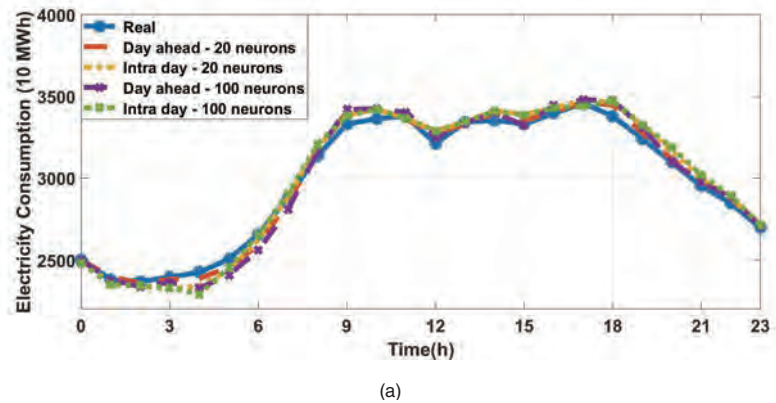


Figure 6 (a) Prediction curve, and (b) Prediction interval using standard deviation method for Tokyo electricity demand^[10]

Further, the implementation of ML algorithms can be made at not only power utility companies but also end-users such as smart homes, which makes ML being a distributed intelligence for energy grids.

As an example, Figure 6 shows the demand prediction for Tokyo using a machine learning approach on 26 October 2018 based on data of weather and demand one month before. The ADMM method is employed for solving the least-absolute optimization problem to obtain the model parameters.^[10]

Conclusion

This research has proposed a unified methodology based on multi-agent system for distributed implementation of the solutions to the problems of energy supply-demand balance, optimization of performance and efficiency of storage systems, robustness of energy grids to sudden changes. By means of multi-agent system, a wide range of power management and prediction functions required from in-vehicle battery to home, region, and even inter-region energy supply and demand will be executed by one or multiple agents, at different scales. Its way of system design and operation is consistent, which is well advanced and unique in this domain. Thus, the proposed research shows practical paths to solve the problems of upcoming energy network systems such as renewable energy integration and emergency power management.

References

- [1] Dinh Hoa Nguyen, "Reduced-order Distributed Consensus Controller Design via Edge Dynamics", *IEEE Transactions on Automatic Control*, vol. 62(1), pp. 475-480, 2017.
- [2] Dinh Hoa Nguyen, "A Sub-Optimal Consensus Design for Multi-Agent Systems based on Hierarchical LQR", *Automatica*, vol. 55, pp. 88-94, 2015.
- [3] Dinh Hoa Nguyen, Shinji Hara, "Hierarchical Decentralized Controller Synthesis for Heterogeneous Multi-Agent Dynamical Systems by LQR", *SICE Journal of Control, Measurement, and System Integration*, vol. 8, no. 4, pp. 295-302, 2015.
- [4] Dinh Hoa Nguyen, Shun-ichi Azuma, Toshiharu Sugie, "Novel Control Approaches for Demand Response with Real-time Pricing using Parallel and Distributed Consensus-based ADMM", *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, vol. 66(10), pp. 7935-7945, 2019.
- [5] Javad Khazaei, Dinh Hoa Nguyen, "Multi-Agent Consensus Design for Heterogeneous Energy Storage Devices with Droop Control in Smart Grids", *IEEE Transactions on Smart Grid*, vol. 10(2), pp. 1395-1404, 2019.
- [6] Dinh Hoa Nguyen, J. Khazaei, "Multi-Agent Time-Delayed Fast Consensus Design for Distributed Battery Energy Storage Systems", *IEEE Transactions on Sustainable Energy*, vol. 9(3), pp. 1397-1406, 2018.
- [7] Dinh Hoa Nguyen, T. Narikiyo, M. Kawanishi, "Optimal Demand Response and Real-time Pricing by a Sequential Distributed Consensus-based ADMM Approach", *IEEE Transactions on Smart Grid*, vol. 9(5), pp. 4964-4974, 2018.
- [8] Dinh Hoa Nguyen, J. Khazaei, S. W. Stewart, J. Annoni, "Distributed Cooperative Control of Wind Farms with On-site Battery Energy Storage Systems", in Radu-Emil Precup, Tariq Kamal, Syed Zulqadar Hassan (Eds.), "Advanced Control and Optimization Paradigms for Wind Energy Systems", Springer (Power System Book Series). DOI: 10.1007/978-981-13-5995-8 (<https://www.springer.com/gp/book/9789811359941>)
- [9] Dinh Hoa Nguyen, Huynh Ngoc Tran, Tatsuo Narikiyo, Michihiro Kawanishi, "A Distributed Optimization Method for Optimal Energy Management in Smart Grid", in Alfredo Vaccaro (Eds.), "Energy Efficiency in Smart Grids", IntechOpen. DOI: <http://dx.doi.org/10.5772/intechopen.84136>
- [10] Dinh Hoa Nguyen, "L₁ Optimization for Sparse Structure Machine Learning Based Electricity Demand Prediction", in "Optimization in Large Scale Problems: Industry 4.0 and Society 5.0 Applications", Springer Optimization and Its Applications, Springer Nature Switzerland AG (In Press).



Nguyen Dinh HOA

グエン ディン ホア

Assistant Professor
International Institute for Carbon-Neutral Energy
Research (WPI-I2CNER), Institute of Mathematics
for Industry (IMI), Kyushu University
Ph.D.

Development of Parameter Sensitivity Plot and Application to Modeling of Lithium-ion Secondary Batteries

パラメータ感度プロットの開発とリチウムイオン二次電池のモデリングへの応用

Ichiro MARUTA

丸田 一郎

In this paper, we propose the normalized parameter sensitivity plot as a new tool for analyzing the difficulty of parameter estimation in modeling. The plot visualizes the contribution of the identification inputs to the parameter estimation accuracy and the relative relationship between the estimation accuracy of multiple parameters in the frequency domain. This relative relationship sets a limit on practical estimation accuracy, and the plot is useful for evaluating this limit. As an application example, a model of a rechargeable battery for an electric vehicle is analyzed, and it is shown that the proposed approach can obtain information useful in the selection of model structure and planning of identification experiments.

本稿では、モデリングにおけるパラメータ推定の困難さを解析するための新しいツールとして、正規化パラメータ感度プロットを提案する。このプロットは同定入力のパラメータ推定精度への寄与と、複数のパラメータの推定精度の相対的な関係を周波数領域において可視化する。この相対的な関係によって実際の推定精度の限界が定まり、その推定精度限界の評価にプロットが有用であることが示される。また、提案法の活用例として電気自動車用の充電式電池のモデルを解析し、モデル構造の選択やパラメータ推定に必要な実験の計画において有用な情報が得られることを示す。

Introduction

In the next generation society, it is necessary to control large-scale network systems such as smart grids and complex systems such as human behavior. For designing control systems, model construction is indispensable, and the conventional approach is to prepare a model with the same structure as the system and estimate the parameters included in the model from the data. However, it is unrealistic to build a model with an equivalent structure for complex / large-scale systems and estimate the parameters with the required accuracy. Thus, it is necessary to simplify the model structure.

From this aspect, it is important to know the degree of the difficulty in estimating parameters for a given model structure, and the Cramér-Rao bound is known to be a powerful tool especially for linear time-invariant models.^[1] By using the bound, we can predict how accurate the estimate can be once we know the amount of noise. The results also can be interpreted in the frequency domain.^[2] However, in practical problems, many uncertain factors,

such as the error caused by the inconsistency between the model structure and the target system, should be handled as noise. Thus, it is not straightforward to estimate the difficulty based on the Cramér-Rao bound, which depends on the noise spectrum.

For this background, we introduce a new practically useful tool for discussing the degree of the difficulty in estimating parameters in linear time-invariant continuous-time models. The newly introduced tool is the normalized parameter sensitivity plot. In the plot, spectral characteristics of the normalized parameter sensitivities of a continuous-time transfer function model G with a set of parameter $\theta \triangleq [\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_{n_\theta}]^T$, that is,

$$\theta_1 \frac{\partial G}{\partial \theta_1}, \theta_2 \frac{\partial G}{\partial \theta_2}, \dots, \theta_n \frac{\partial G}{\partial \theta_{n_\theta}}$$

are plotted in one figure. For example, the normalized parameter sensitivity plot for the mass-spring-damper system whose structure is shown in Figure 1a and with the parameter

$$\theta \triangleq [m_1, k_1, d_1, m_2, k_2, d_2, m_3, k_3, d_3]^T \dots\dots\dots (1)$$

$$= [100, 100, 100, 10, 10, 10, 1, 1, 1]^T$$

is shown in Figure 1b. In this paper, it is shown that a practically important limitation on the estimation accuracy, which does not depend on noise spectrum, is derived by focusing on the relative positions of the plots.

This paper is based on the authors' previous work^[3] and organized as follows. First, we review the relationship between the parameter sensitivity and the estimation accuracy in Section “Parameter sensitivity and difficulty in estimating parameter”. In Section “Normalized parameter sensitivity plot”, the usage of the normalized sensitivity plot is proposed, and its theoretical background is described. In Section “Application to battery system”, a lithium-ion rechargeable battery model is analyzed by the proposed approach to show how the normalized parameter sensitivity plot is used in practical problems. Finally, Section “Conclusion” concludes the paper.

In this paper, we denote the differential operator and the Laplace operator with p and s , respectively. For transfer functions G_1 and G_2 , their inner product is denoted by

$$\langle G_1, G_2 \rangle \triangleq \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G_1(j\omega) \overline{G_2(j\omega)} d\omega,$$

and the norm is defined as

$$\|G_1\| \triangleq \langle G_1, G_2 \rangle^{\frac{1}{2}}$$

For a matrix M , $\|M\|_2$ is the norm defined by the maximum singular value of M . In addition, $\text{cov}(\cdot)$ and $\text{var}(\cdot)$ denote the covariance matrix and the variance, respectively.

Parameter Sensitivity and Difficulty in Estimating Parameters

In this section, the relationship between the normalized parameter sensitivity $\theta_k(\partial G / \partial \theta_k)$ and the estimation accuracy is reviewed.

Problem formulation

First, the setting of the estimation problem, on which the discussion about the estimation accuracy is based, is described. The target system is a single input and single output continuous-time linear time-invariant system, whose input $u(t)$ and output $y(t)$ are related through the differential equation

$$y_0(t) = G(p, \theta)u(t)$$

and

$$y(t) = y_0(t) + v(t).$$

Here, $v(t)$ is a zero-mean normally distributed random noise with the power spectral density $\Phi(\omega)$, and $G(p, \theta)$ is a rational function of the differential operator p and parametrized by $\theta \triangleq [\theta_1, \dots, \theta_{n_\theta}]^T$ (the parameter to be estimated). We assume that the parameters $\{\theta_1, \dots, \theta_{n_\theta}\}$ have ratio scale, that is, each parameter is a quantity for which we can construct a meaningful fraction. Examples of quantities with ratio scale include mass, length, resistance, capacitance and the Kelvin temperature. Celsius temperature is not a ratio scale since it does not have absolute zero and we cannot construct a meaningful fraction of two temperatures. As for the input, $u(t)$ equals 0 when $t < 0$ and is a known square-integrable function. Also, we let $Y_0(s)$ and $U(s)$ be the Laplace transforms of $y_0(t)$ and $u(t)$, respectively.

For this system, we consider the accuracy of the unbiased parameter estimate $\hat{\theta}$ calculated from the system output sampled with time interval h , that is,

$$y \triangleq [y_1, \dots, y_N]^T,$$

$$y_k \triangleq y((k-1)h),$$

where N is the number of available samples.

Since the parameters $\{\theta_1, \dots, \theta_{n_\theta}\}$ are assumed to have ratio

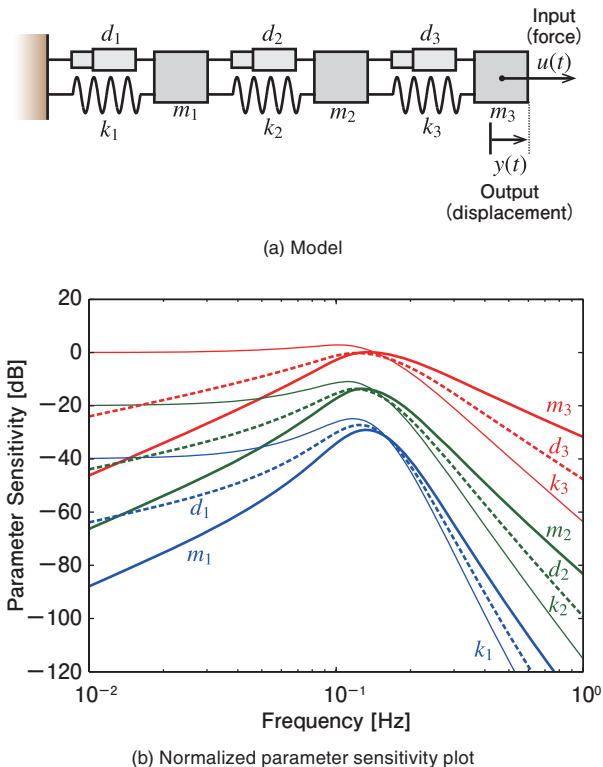


Figure 1 Illustrative example (mass-spring-damper system)

scale, we focus on the normalized estimate of the parameter

$$\tilde{\theta} \triangleq [\tilde{\theta}_1, \dots, \tilde{\theta}_{n_\theta}]^T \triangleq \left[\frac{\hat{\theta}_1}{\theta_1}, \dots, \frac{\hat{\theta}_{n_\theta}}{\theta_{n_\theta}} \right]^T,$$

to make the comparison between parameters more clear and use $\text{cov}(\tilde{\theta})$ for evaluating the accuracy of the estimate.

Cramér-Rao Bound and Parameter Sensitivity

It is well known that the Cramér-Rao inequality

$$\text{cov}(\tilde{\theta}) \geq I^{-1} \dots\dots\dots (2)$$

holds for the unbiased estimate $\tilde{\theta}$, where I is the Fisher information matrix. For the measurement y with sufficiently small sampling interval ($h \rightarrow 0$) and long time span ($Nh \rightarrow \infty$), (m, n) -element of I asymptotically satisfies

$$\begin{aligned} I_{mn} &= \frac{\theta_m \theta_n}{2\pi h} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\Phi(\omega)} \frac{\partial Y_0(j\omega)}{\partial \theta_m} \frac{\overline{\partial Y_0(j\omega)}}{\partial \theta_n} d\omega \\ &= \frac{\theta_m \theta_n}{2\pi h} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{|U(j\omega)|^2}{\Phi(\omega)} \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_m} \frac{\overline{\partial G(j\omega)}}{\partial \theta_n} d\omega \end{aligned} \dots\dots (3)$$

as shown in.^[2] This equation associates the normalized parameter sensitivity $\theta_m (\partial G / \partial \theta_m)$ with the estimation accuracy.

Especially, if $v(t)$ is a white noise, Equation 3 can be rewritten as

$$\begin{aligned} I_{mn} &= \frac{\theta_m \theta_n}{2\pi h \sigma^2} \int_{-\infty}^{\infty} |U(j\omega)|^2 \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_m} \frac{\overline{\partial G(j\omega)}}{\partial \theta_n} d\omega \\ &= \frac{\theta_m \theta_n}{2\pi h \sigma^2} \left\langle U \frac{\partial G}{\partial \theta_m}, U \frac{\partial G}{\partial \theta_n} \right\rangle, \end{aligned}$$

where σ^2 is the variance of the sampled $v(t)$.

Normalized Parameter Sensitivity Plot

Next, we discuss how the normalized parameter sensitivity plot can be utilized for evaluating the difficulty in estimating the parameters based on Equation 2 and Equation 3.

Information from single parameter sensitivity plot

In preparation for stating the main result related to multiple parameter sensitivity plots, the information obtained from a single parameter sensitivity plot is summarized.

For the estimation accuracy of m -th parameter θ_m ,

$$\text{var}(\tilde{\theta}_m) \geq (I_{mm})^{-1}$$

holds,^[4] and together with (3),

$$\text{var}(\tilde{\theta}_m) \geq \frac{1}{2\pi h} \left(\int_{-\infty}^{\infty} \left| \theta_m \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_m} \right|^2 \frac{|U(j\omega)|^2}{\Phi(\omega)} d\omega \right)^{-1} \dots\dots\dots (4)$$

is derived. Especially, if $v(t)$ is a white noise, Equation 4 can be written as

$$\text{var}(\tilde{\theta}_m) \geq \frac{\sigma^2}{h} \left\| \theta_m \frac{\partial G}{\partial \theta_m} U \right\|^{-2}.$$

These results are well-known,^[1] and Equation 4 shows that the frequency band of the identification input u which is important for estimating θ_m is indicated by the normalized parameter sensitivity function $\theta_m (\partial G / \partial \theta_m)$.

For example, the peaks of the normalized parameter sensitivity plots in Figure 1b are concentrated on the resonant frequency of the system and lead to the conclusion that the identification input with such frequency spectrum is effective as expected.

Information from relative parameter sensitivity

In practical problems, model structures cannot be completely consistent with the target systems, and the error stem from the inconsistency is also contained in the measurement error $v(t)$. Since the frequency spectrum of such error strongly depends on the identification input u and is difficult to estimate, the absolute value of the lower bound estimated with Equation 3 is often unreliable.

To deal with the problem, we focus on the relative bound for the estimation variances of the parameters. For the physically meaningful parameters, we often have prior knowledge about the parameter uncertainty to a greater or lesser extent. For example, mechanical friction is normally non-linear phenomenon and it seems impossible to determine friction coefficients with the accuracy better than 10%. Together with such information, the following theorem which gives the relative lower bound for the estimation variance is useful.

Theorem 1: Assume the identification input signal u has spectrum in a band Ω , that is,

$$\omega \notin \Omega \Rightarrow U(j\omega) = 0,$$

and let σ_m^2 be the variance of the efficient estimate of a parameter $\tilde{\theta}_m$. Then, the variance of the estimate of another parameter $\tilde{\theta}_n$ satisfies

$$\text{var}(\hat{\theta}_m) \geq \left(\inf_{\omega \in \Omega} \left| \frac{\theta_m \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_m}}{\theta_n \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_n}} \right| \right)^2 \sigma^2_m.$$

Proof: See [3].

Theorem 1 states that there is a limitation on the estimation accuracy, which does not depend on the noise spectrum and the detail of the identification input. The coefficient which characterizes the limitation

$$\inf_{\omega \in \Omega} \left| \frac{\theta_m \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_m}}{\theta_n \frac{\partial G(j\omega)}{\partial \theta_n}} \right|$$

corresponds to the distance in the normalized parameter sensitivity plot. Since Theorem 1 holds regardless of the noise spectrum, it gives information about the estimation variance even under the existence of noise with unknown spectrum.

Remark 1: If the normalized parameter sensitivity plot for θ_n dips below the one for θ_m by x [dB], the standard deviation of $\hat{\theta}_n$ is at least x [dB] larger than the one achievable for $\hat{\theta}_m$.

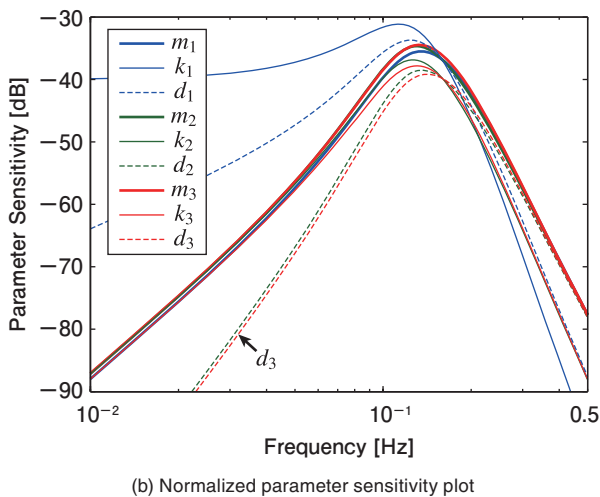
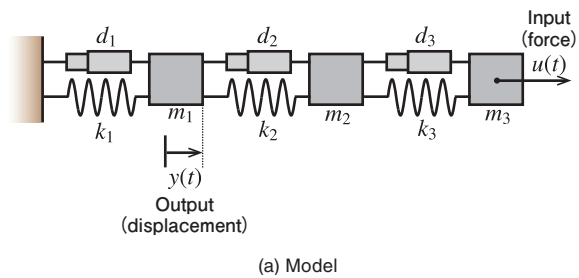


Figure 2 Parameter sensitivity plot for improved mass-spring-damper system (displacement of m_1 is measured instead of m_3)

For example, if d_3 in Figure 1 has 10% uncertainty, the standard deviation of the estimate for d_1 is larger than 100% since the normalized sensitivity for d_1 is smaller than that for d_3 by more than 20 dB, and the estimation of d_1 is found to be impossible in practice. For this example, distances between the sensitivity plots can be made smaller by measuring the displacement of m_1 instead of m_3 (see Figure 2), and the difficulty in estimating the parameters can be reduced. Although the improvement made by changing the measured variable is intuitively acceptable, the absolute value of the sensitivity is not improved from Figure 1 to Figure 2, and this improvement is not explained easily without evaluating the relative relationship between the parameter sensitivity.

Application to Battery System

Next, a model of a lithium-ion rechargeable battery for electric vehicles is analyzed by the proposed approach to illustrate the effectiveness of the approach in realistic situations. Indeed, the estimation of the detailed status of the battery is the key for improving the energy efficiency while preserving safety (see [5] and references therein), and it is important to know the degree of the difficulty in estimating the parameters related to the battery status.

In this paper, we consider the linear battery model shown in Figure 3. In the figure, R_0 represents the DC resistance of the electrolyte, C represents the linearized relationship between the state of charge (SOC) and the open circuit voltage (OCV), and Z_w represents the Warburg impedance which models the ion diffusion process.^[6] The relationship between the input current ($= u(t)$) and the output voltage ($= y(t)$) of the battery model can be described by the transfer function

$$G_d(s) = \frac{k}{FCC_0 \cdot \text{SOH}} \frac{1}{s} + R_0 + \frac{R_d}{\sqrt{\tau_d s}} \tanh \sqrt{\tau_d s}. \tag{5}$$

In Equation 5, the first term corresponds to C in the figure; k is the proportionality coefficient for the linearly approximated relationship between the SOC and the

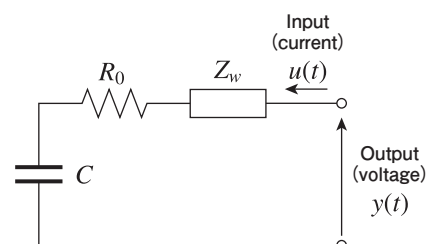


Figure 3 Linear circuit model for Lithium-ion battery

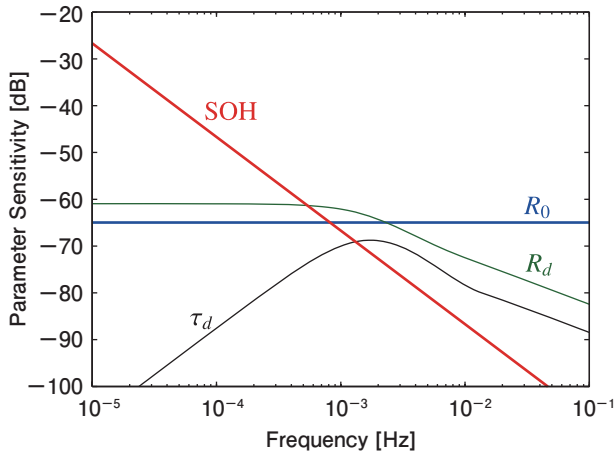


Figure 4 Normalized parameter sensitivity plot for battery model with Warburg impedance diffusion process model (G_d)

OCV; FCC_0 is the full charge capacity for the brand-new battery; and SOH is the state of health parameter which represents the degree of battery deterioration.

For this model, we consider the difficulty in estimating the parameter

$$\theta_d = [R_0, R_d, \tau_d, SOH]^T$$

based on the proposed approach. Since rough value of the parameters are required for the analysis, we use $R_0 = 0.565 \text{ m}\Omega$, $R_d = 0.896 \text{ m}\Omega$, $\tau_d = 224 \text{ s}$, $SOH = 91\%$, and $FCC_0 = 2.36 \times 10^5 \text{ C}$, which are estimated from the experiment in the literature.^[7]

Figure 4 shows the normalized parameter sensitivity plot for the model. From the figure, we can conclude that:

- For reliably estimating SOH, or the degree of battery deterioration, data with a time span longer than 2000 s are desired since the parameter sensitivity for SOH is relatively smaller than that for the other parameters for the frequency higher than 10^{-3} Hz .
- For estimating SOH in a shorter time, the uncertainties of R_d , R_0 and τ_d are the most important bottle necks in this order since the normalized sensitivities for these parameters surpass that for SOH in this order when increasing the frequency.
- The estimation of τ_d is relatively more difficult because the normalized parameter sensitivity for τ_d never come on the top. And, the identification input around 0.002 Hz is most effective.

This information is of great value in devising strategies for estimating the battery statuses, such as, the level of deterioration, and is consistent with the empirical knowledge of the battery. Note that the batteries for electric vehicles are used on a time scale larger than hours, and the time scale of the information obtained by analyzing the plot is reasonable.

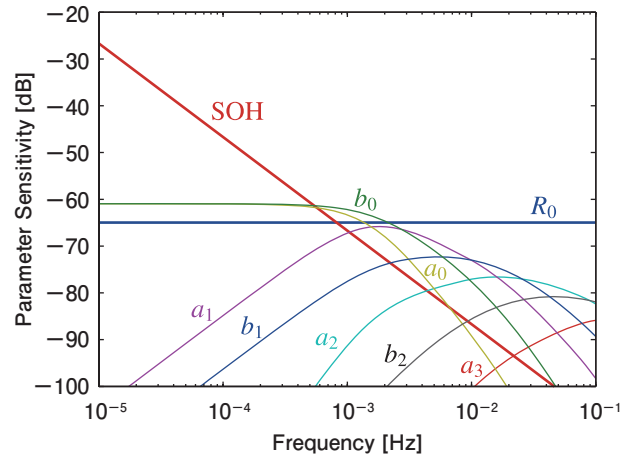


Figure 5 Normalized parameter sensitivity plot for battery model with generic transfer function diffusion process model (G_r)

In addition, we attempt to evaluate another model structure. In Equation 5, we adopted the Warburg impedance model for the ion diffusion process.

However, it is also possible to adopt generic rational transfer function model

$$G_r(s) = \frac{k}{FCC_0 \cdot SOH} \frac{1}{s} + R_0 + \frac{b_2s^2 + b_1s + b_0}{a_3s^3 + a_2s^2 + a_1s + a_0} \dots \dots \dots (6)$$

for the process. Here, the order of the transfer function model is set three because the number is enough for approximating the Warburg impedance model for practical I/O data.^[7] Since this model have larger number of parameters than Equation 5, it might be possible to provide models with greater accuracy.

For this model, the normalized parameter sensitivity plot for the parameter

$$\theta_r = [R_0, SOH, a_0, a_1, a_2, a_3, b_0, b_1, b_2]^T$$

is shown in Figure 5. In the figure, the plots for b_2 and a_3 dip below the one for R_0 by nearly 20 dB. The uncertainty of R_0 is empirically not smaller than 10%, one cause of which is thought to be unmodeled dependency on the temperature, we can conclude that it is impossible to obtain dependable estimates of b_2 and a_3 .

On the other hand, the largest distance among the normalized parameter sensitivities is around 5 dB for Figure 4, and there is no major problem predicted from Theorem 1. Therefore, we can conclude that the model Equation 5 is more promising.

As shown in this example, the normalized parameter sensitivity plot can be utilized for devising strategies for estimating parameters and selecting models with appropriate

complexity.

Conclusion

In this paper, the analysis based on the normalized parameter sensitivity plot is introduced for evaluating the degree of the difficulty in estimating model parameters. From the plot, the limitation on the estimation accuracy, which stems from the relative relationship between the model sensitivities for the parameters, is easily obtained. The theoretical background of this limitation is shown, and an example with a rechargeable battery system is shown to illustrate how the proposed approach provides valuable information in practical problems.

The proposed approach can be expected to be a useful tool for dealing with large-scale complex systems in the next generation society. Part of its usefulness is shown in the example of the rechargeable battery, which plays a crucial role in the next generation society.

References

- [1] L. Ljung, *System Identification: Theory for the User*, Second ed., Prentice-Hall, 1999.
- [2] A. Zeira and A. Nehorai, "Frequency domain Cramer-Rao bound for Gaussian processes," *IEEE Transactions on Acoustics, Speech and Signal Processing*, vol. 38, pp. 1063-1066, 1990.
- [3] I. Maruta, A. Baba and S. Adachi, "Analysis of difficulty in estimating physically-meaningful model parameters based on normalized parameter sensitivity plot," in *the 54th IEEE Conference on Decision and Control (CDC)*, 2015.
- [4] B. Z. Bobrovsky, E. Mayer-Wolf and M. Zakai, "Some Classes of Global Cramér-Rao Bounds," *The Annals of Statistics*, vol. 15, pp. 1421-1438, 1987.
- [5] L. Lu, X. Han, J. Li, J. Hua and M. Ouyang, "A review on the key issues for lithium-ion battery management in electric vehicles," *Journal of Power Sources*, vol. 226, pp. 272-288, 2013.
- [6] D. Di Domenico, E. Prada and Y. Creff, "An Adaptive Strategy for Li-ion Battery SOC Estimation," in *Proceedings of the 18th IFAC World Congress*, Milano, 2011.
- [7] T. Kawaguchi, I. Maruta, A. Baba and S. Adachi, "Continuous-time System Identification of Rechargeable Battery in Electric Vehicles in Consideration of Diffusion Phenomena," *Transactions of the Society of Instrument and Control Engineers*, vol. 49, pp. 670-677, 2013.

© 2015 IEEE. Reprinted, with permission, from I. Maruta, A. Baba and S. Adachi, "Analysis of difficulty in estimating physically-meaningful model parameters based on normalized parameter sensitivity plot," in *the 54th IEEE Conference on Decision and Control (CDC)*, 2015.



Ichiro MARUTA

丸田 一郎

Associate Professor
Department of Aeronautics and Astronautics,
Graduate School of Engineering, Kyoto University
Doctor of Informatics

Application and Management of Hydrogen Energy Technology Toward the Solar Cell Based Distributed Electricity Grid

太陽光発電を主力とする分散グリッド実現のための水素技術の導入、制御法の検討

Kei HASEGAWA

長谷川 馨

The renewable energy-based energy mix is strongly desired, but the gap between the electricity demand/supply will increase, so the energy storage in a distributed grid is expected as key technologies. At the same time, the technology to forecast and control the demand/supply are also required. Based on these two research works, the availability of the hydrogen energy storage and the technological issues were discussed. By using annual, 1-min resolution energy data in the smart energy system “ENE-Swallow” which is applied in Tokyo Institute of Technology, the energy balance in the future distributed grid with a large-scale solar cell was estimated. Also, based on the solid oxide fuel cell kinetics model on triple phase boundary, the comprehensive model of reversible fuel cell / electrolysis is discussed to predict the electrolysis performance from that of the fuel cell.

再生可能エネルギーの主力電源化が強く求められる中、増大する需要-供給ギャップを制御するための蓄エネルギーの分散グリッドへの導入が期待されている。また、電力需要、供給の変動が複雑化するため、その予測、制御技術の革新も必須である。本研究は水素蓄エネルギーに関する2研究のもと、分散システムへの導入可能性と課題を議論した。東工大で運用されているスマートシステム「エネスワロー」に蓄積される年間、1分ごとのデータを用い、太陽電池が大量に導入された想定での水素蓄エネルギーの導入評価を行った。また、固体酸化物燃料電池の反応速度モデルの電解反応への適用可能性を評価し、燃料電池の知見の電解反応への活用を検討した。

Introduction

A challenging target of CO₂ emission reduction in Japan as 26% until 2030 and 80% until 2050 have settled under the Paris Agreement at COP 21. To achieve the target, almost zero-emission is required in the electricity supply and the renewable energy based energy mix and the shift to hydrogen society is strongly desired.^[1] At the same time, the installation of the renewable energy, especially the solar power generation, rapidly increasing due to the rapid cost reduction in the last ten years. On the other hand, to keep their installation rate of variable renewable energy (VRE), the development of the distributed grid is a key role, but the increase of both of the temporal and positional gap between the electricity demand and supply will be a critical issue. Solar cell works only daytime and the power generation decreases significantly at the evening, so the daily profiles of the gap between the

electricity supply and demand becomes a shape so-called “duck curve”^[2] and the matching the electricity demand^{*1} and supply by the power grid such as controlling the output of thermal power generation or using pumped-power generation becomes a hard work. So the desired amount of energy conversion, transport and storage expands and the hydrogen related technologies are expected as one of the key technologies. At the same time, the demand/supply gap becomes complicated and hard to predict in distributed grids because of their smaller scale, so further development for the forecasting and managing technology is necessary. Both the power supply by VRE and the human behavior are strongly related to the local climate or the weather, especially on the future distributed grid in the urban area, a part of the energy supply and demand has a strong relationship between each other in the local area. Thus, (1) to develop each elemental technologies under the scientific basis, (2) to establish the total

system to manage each device under the unsteady conditions and (3) to develop the technology to forecast and control the electricity demand/supply with closely relating each other are all required and the comprehensive discussion under the sufficient understanding of each other elements is also necessary.

*1: Matching the electricity demand and supply: the electricity suppliers are obligated to feed the power with a stable voltage to avoid the blackout and the damage for electrical appliances. They keep the voltage in a certain range by forecasting the electricity demand and control the amount of electricity supply.

Under the Global Hydrogen Energy Unit in Tokyo Institute of Technology, a total scenario investigative research of the development of hydrogen related technologies are carried out and discussed the availability of the hydrogen energy, the future scenario to solve the technological issues.^[1] In the investigation we studied the following two topics which is relating to the hydrogen technology for energy storage in the distributed energy system. One is the evaluation of the applicability of hydrogen energy storage into the distributed system based on the real data. Another is the prediction of the future development of solid oxide fuel cell/ electrolysis (SOFC/EC) based on the scientific discussion and the trend analysis. By those two different approaches based on the real data in the distributed energy system and the device performance based on the scientific basis, the availability of the “local hydrogen” as the energy storage to utilize VRE in the distributed energy system, the issues to install and control the system and the development scenario are discussed.

Research 1: evaluation of the applicability of hydrogen energy storage into the distributed system based on the real data

In order to supply electricity with the stable voltage under

the unsteady demand, the central power grid suppliers have controlled the power generation output under a certain empirical forecast of the demand. The recent significant increase of VRE installation makes these situation more complicated. Figure 1 shows an electricity supply and demand curve in a sunny day in autumn, 2017 in Kyusyu area (the graphs were drawn from the ref.^[3]). Because the solar power generation (the cells which is not connected to the grids are not counted) reaches over 70% of total demand in daytime at maximum, the supply controlled by saving the output of thermal power generators and finally a certain amount of solar power is also curtailed. In such a situation, to take some role balancing between electricity supply and demand in the distributed grids with applying and using some energy storage technology will be a key to the continuous VRE installation in the society. While the electrochemical energy conversion such as secondary battery is a strong candidate for the energy storage, hydrogen energy storage with fuel cell and water electrolysis is considered with their advantage for the energy storage with a longer time and the lower system cost. Many research groups have been evaluated the feasibility of the energy storage in the both the central and the distributed grid,^[4, 5] but the number of studies which investigates the future situation with a larger VRE installation ratio such as over 30% is limited. The required amount of the energy storage devices and their frequency of their usage will be totally different, so the discussion with using the annual data will be important.

By considering the distributed grid with 10,000 kW electricity demand and a large scale VRE and evaluate the applicability of installing and utilizing the hydrogen energy storage system to equalize the supply/demand balance, the key factor (or the key technology necessary to develop in the near future) to optimize the total system is discussed. In this study, we estimated the future scenario with a large amount of solar cell installation in the

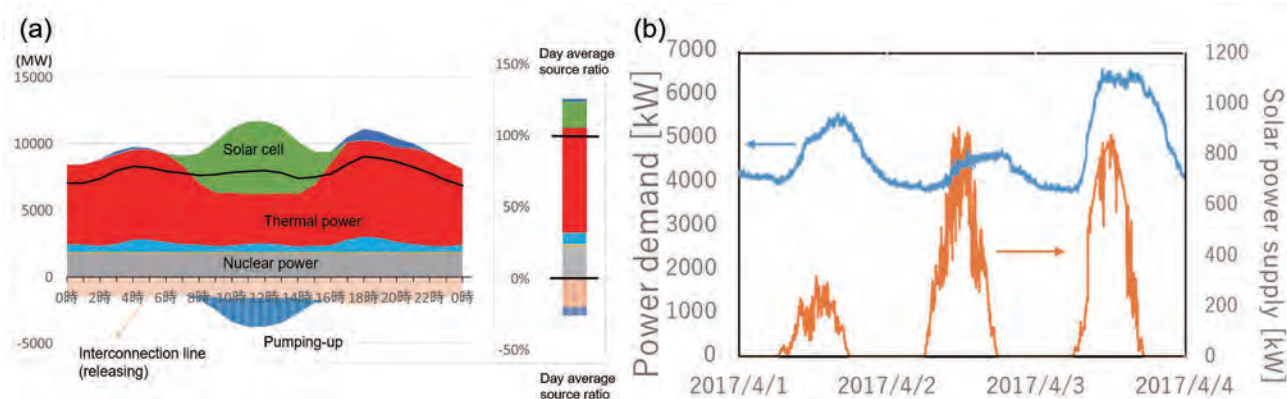
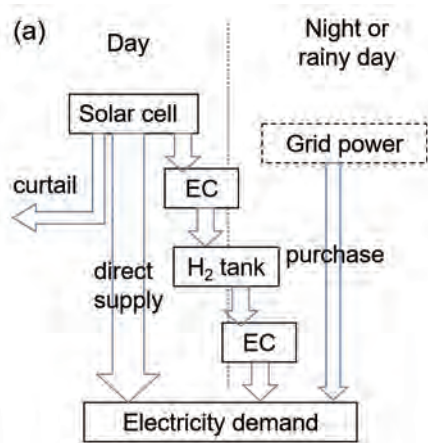


Figure 1 (a) A daily profile of the electricity demand (black line) and the supplies on a fall sunny day in 2017. The graph are made from the open data by Kyusyu Electric Power Co.^[3] (b) The profiles of the electricity demand and solar power generation in a few day at Oookayama Campus, Tokyo Institute of Technology. The data were stored by “ENE-Swallow”.

distributed grid which makes more difficult to manage the balance between the electricity supply and demand. In the local distributed grid, the time profile of both the electricity demand and supply varies and directly depends on the environmental condition and human behavior, so the investigation based on the real data in the distributed system is required. In Oookayama campus, Tokyo Institute of Technology, a smart energy system “ENE-Swallow” which is developed by Prof. Ihara et al. installed and is managing the energy supply (including 1,400 kW solar cells) and demand (10,000 kW at maximum). Also, in Energy and Environment Innovation (EEI) Building,

650 kW solar cell, 100 kW fuel cell, 70 kW gas engine and 100 kWh lithium ion batteries are installed and the CO₂ emissions are saved into 40%. In “Ene-Swallow”, the annual and data of the energy supply by each devices and the demand of each facility are stored in 1 s~1 min resolutions. Figure 1b shows examples of the electricity demand and solar power generation data in a few days with a 1 min resolution in Oookayama campus. Both data, especially the solar power, largely scattered (seemed to be randomly) depends on the environment and/or the human behavior. By using the real data, we estimated the energy supply/demand balance in the future distributed grid with a large-scale VRE and discussed the feasibility of the local hydrogen energy storage system in the grid.



(b)

Device	Price (¥/W)	Lifetime (Year)	Efficiency (HHV)
PV	70	30	
EC (Alkaline)	70	10	0.8
FC (SOFC)	105	20	0.65
H ₂ tank (45 Mpa)	6,000 (¥/L)	20	4 (kg-H ₂ /¥)
Compressor	200,000 (Nm ³ /h)	20	
Purchase electricity price from grid	21 (¥/kWh)		

Figure 2 (a) The assumed distributed energy system with hydrogen energy storage in the study. (b) The technology parameter sets of devices in the near future (about 2030s).

We assumed a distributed grid with a 10,000 kW maximum energy demand and a large installation ratio of solar cell (> 60% of the demand) and the hydrogen energy storage system composed of the fuel cell (FC), electrolysis (EC), hydrogen tank and compressor. Annual data of electricity demand and solar power generation at April, 2016 ~ March, 2017 was used for the investigation. The total energy system is considered as shown in Figure 2a and the parameters of each device at the 2030s were collected as shown in Figure 2b.^[2, 6-9] The self-sufficient ratio by solar cell (= photovoltaic, PV) was set as 60-100% by changing the PV installation ratio as 100% to 190% vs. total demand and estimated the total system cost at different installation ratio of FC and EC by calculating the required hydrogen tank and the purchase of electricity and integrating the annual required amount of hydrogen and electricity curtailment.

Figure 3a, 3b shows the total electricity price including the system cost and the purchased electricity at at 100% PV installation ratio (a) and 190% and at different EC installation ratio. As a result, in some case with the device cost at the 2030s, installing a certain amount of hydrogen energy storage can reduce the total electricity cost at both

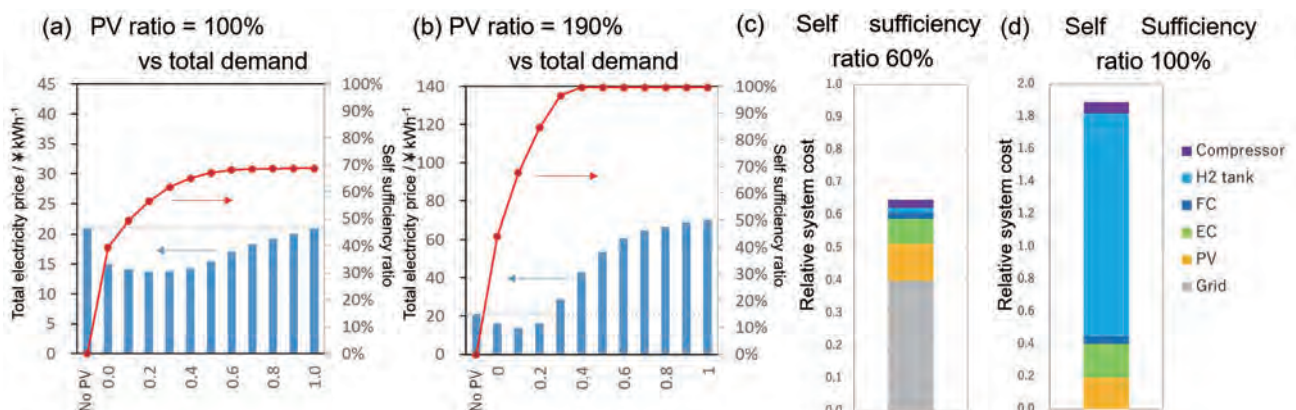


Figure 3 (a)(b) The calculated electricity price and the self sufficiency ratio in the distributed system with different EC installation ratio at PV ratio of 100% vs. total demand (a) and 190% (b). (c)(d) The cost details at 60% self sufficiency (c) and 100% (d).

case. At the PV installation ratio is 100%, the total electricity cost decreased but the maximum self sufficiency ratio reaches less than 70%. On the other hand, to achieve the self sufficiency ratio as 100%, PV installation ratio is needed to be > 190% because of the energy conversion efficiency of FC and EC, and a large amount of hydrogen tank was required as shown in Figure 3c, 3d. By analyzing the seasonal tendency of the hydrogen in the tank, they worked only one time a year to solve the seasonal (= long time scale) supply/demand gaps and their low frequency of usage made them higher cost. The cost reduction of hydrogen generating facilities such as EC, tank or compressor are supposed to be desired and the total management strategy not only the energy storage itself should be discussed. Our total scenario investigations are ongoing including the topics of the effects of the installation amount and the setting angles of solar cell, consideration of future electricity market or the contribution for the leveling of the electricity supply in the grid.

Research 2: investigation of comprehensive kinetics model of reversible solid oxide fuel cell / electrolysis with competitive adsorption reaction on anode triple phase boundary

SOFC has developed for a large-scale energy conversion device for a long time due to their high efficiency, low material cost and fuel flexibility due to their high operation temperature. SOFC has similar advantages and so it is promising for the hydrogen generation from renewable power source and for distributed energy system to equalize the local unsteady power source. Under the situation, the followability and durability under the unsteady conditions with keeping the energy efficiency are required to follow the gap between the electricity demand and the supply in addition to the maximum hydrogen productivity and efficiency. To achieve those properties, the quantitative understanding of the reaction kinetics at wide range of the operating conditions. Especially, electrolysis is an endothermic reaction with a certain exothermic heat loss, so the appropriate reaction control with keeping the heat balance is required to avoid the damage to the cell materials and to keep the efficiency. Whereas SOFC science and technology have well developed for a past several decades, there are limited number of studies which are specialized in development of SOEC.^[10-12] Because the requirement of electrolysis technology rapidly expanding in a few years, to learn from the knowledge in the SOFC research field is important to accelerate the development of SOEC science and technology and to develop the way to extrapolate the rate of EC from that of FC reaction is required.

To develop the comprehensive kinetic model of reversible reaction, to describe the reaction kinetics on the triple phase boundary*2 (TPB) is necessary. The large overvoltage is required for the reaction of hydrogen and oxygen on the TPB of fuel electrode in SOFC, so the reaction in fuel electrode is the key to establish the comprehensive model of SOEC/FC. To discuss the reaction kinetics on TPB, there are two major group when we focus on the rate determining step. One is the reaction across TPB between the surface of oxide and the metal with the charge transfer and the relationship between the current, i , and overpotential, η , is described as Butler-Volmer equation^[13-15]. Biebelre et al., suggested the reaction as “hydrogen spillover”^[13]. Another kinetics model is the rate determining step as a chemical reaction of the surface adsorbents under the local equilibrium of charge transfer reaction and is described as a kinetics equations of surface chemistry^[16-18]. Mizusaki et al proposed the reaction kinetics under the local equilibrium of charge transfer^[16]. Based on that local charge transfer equilibrium, our research group proposed the kinetics model with the competitive adsorption reaction which is described as a Langmuir-type kinetics equation^[18]. In any models, while the rate of electrolysis has been assumed as the reversible reaction of hydrogen oxidation reaction or a different reaction, the quantitative understanding of the relationship between FC and EC reaction have not been developed yet.

*2: Triple phase boundary (TPB): the interface between (1) gas, (2) oxide as ion conductor and (3) metal electron conductor. The electrochemical reaction proceeds on the interface by these three reactants and how to organize the structure is the key technology in the electrochemical energy conversion devices.

In this work, the reversible reaction was discussed based on our reaction model on TPB and a series of reversible SOFC/EC data. The oxygen activity at the TPB, a_O , is calculated from Ormic-free E_a which the derivation process is shown below as:

$$a_O = \exp\left(\frac{2FE_a}{RT}\right) \dots\dots\dots (1)$$

where F is Faraday constant, E_a = anode potential ($E_a = \Delta V_{\text{terminal}} + \Delta V_{\text{ohmic}} + \eta_c$ where $\Delta V_{\text{terminal}}$ is terminal voltage, ΔV_{ohmic} is ohmic loss and η_c is cathode overvoltage), R is gas constant and T is temperature. The experimental cell was composed of the four electrodes with anode working (AW), anode reference (AR), cathode working (CW) and cathode reference (CR) on the electrolyte as shown in Figure 4a, photograph and the cross sectional SEM image are shown in Figure 4b and c and the Ormic-free E_a is measured the potential difference between AW and CR by current interruption method as shown in

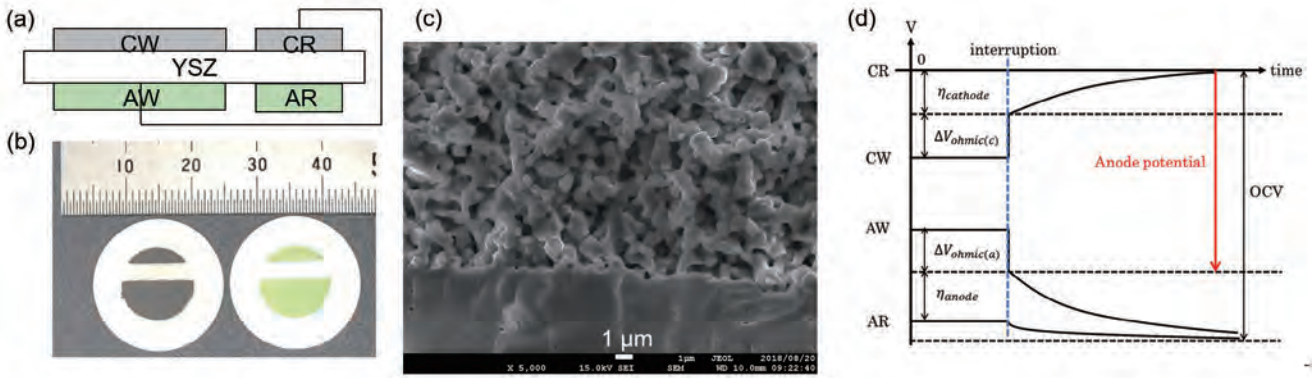


Figure 4 The image (a) and photographs (b) of a four electrode SOFC/EC cell. (c) Cross sectional SEM image of porous anode on YSZ electrolyte. (d) The image of current interruption method in order to measure anode potential, E_a .

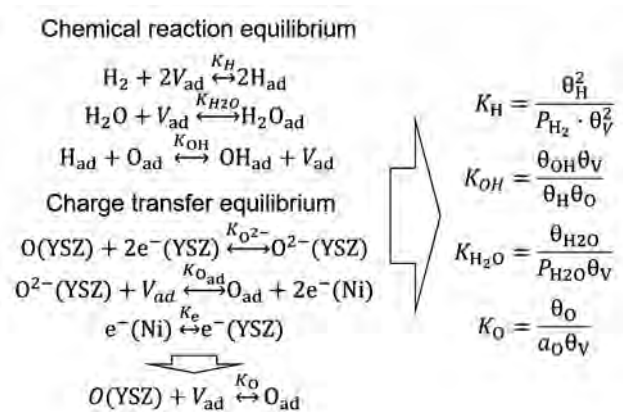


Figure 5 The chemical (up left), electrochemical (down left) equilibrium and the relationship between equilibrium constant and the surface coverages on TPB in the kinetics model.

Figure 4d. The chemical and electrochemical equilibrium on TPB is described as shown in Figure 5 and the rate determining reaction can be described as follows where i is current, i_a and i_c is anodic and cathodic current, k is rate constant and θ is surface coverage on TPB.

$$i = i_a - i_c = k_a \theta_H \theta_{OH} - k_c \theta_{H_2O} \theta_V \quad \dots \dots \dots (2)$$

As a result, the reaction rate is described as the equation.

$$i = \frac{k_{a2} K_H P_{H_2} K_{OH1} K_O a_O}{(1 + K_O a_O + \sqrt{K_H P_{H_2}} + K_{H_2O} P_{H_2O} + K_{OH1} K_O a_O \sqrt{K_H P_{H_2}})^2} - \frac{k_{c2} K_H P_{H_2O}}{(1 + K_O a_O + \sqrt{K_H P_{H_2}} + K_{H_2O} P_{H_2O} + K_{OH1} K_O a_O \sqrt{K_H P_{H_2}})^2} \quad \dots \dots \dots (3)$$

The coverages of each species are determined by a_o , and the local equilibrium state between gas phase and Ni surface nearby TPB. The model is composed of the rate of Langmuir reaction determined by the TPB length depends on the porous electrode structure and the coverage of each

species on Ni nearby TPB that is independent on the electrode structure. We confirmed validity of the model in SOEC reaction by applying it to the SOFC/EC reaction with a series of gas conditions on the electrode with well-defined structure composed of a cermet anode by nickel (Ni)/yttria stabilized zirconia (YSZ) which is the most commonly used.

The calculation flowchart is shown in Figure 6a. After considering the a_o at equilibrium, the equilibrium constant, K_x , were determined by the nominal reaction order vs. a_o , P_{H_2O} or P_{H_2} . Finally, the k was determined by the fitting to the experimental data. Figure 6b, 6c shows the experimental data and the calculation curves of the FC/EC data at the different P_{H_2O} and P_{H_2} . Much higher current than the model was observed at electrolysis mode at each conditions whereas the model reproduced well at power generation mode. In the model as shown in Equation 3, the electrolysis current becomes constant when a_o is sufficiently low, but those continuously increased in the experimental data. Thus, the kinetics of electrolysis reaction is required to be reinvestigated, so we reestablished the kinetic model by considering the local equilibrium of adsorbents, ion and electron nearby TPB.

By considering the local equilibrium of charge transfer reaction of oxygen as shown in Figure 5, the balance of the charge on the Ni and YSZ, the relative electron activity in other words, can be a key to the electrolysis current. It supposes that the negative charge of YSZ around TPB by applying voltage cause the shift of equilibrium between $O(YSZ)$ and O_{ad} and it enhance the flux of O^{2-} at the electrolysis region. Similar phenomena have been discussed as “electrochemical promotion of catalyst (EPOC)” or “non-faradic electrochemical modification of catalytic activity (NEMCA)” effect which occurs on the metal catalysts on the ion conductive oxide support to enhance a catalytic activity of non-faradaic reaction by

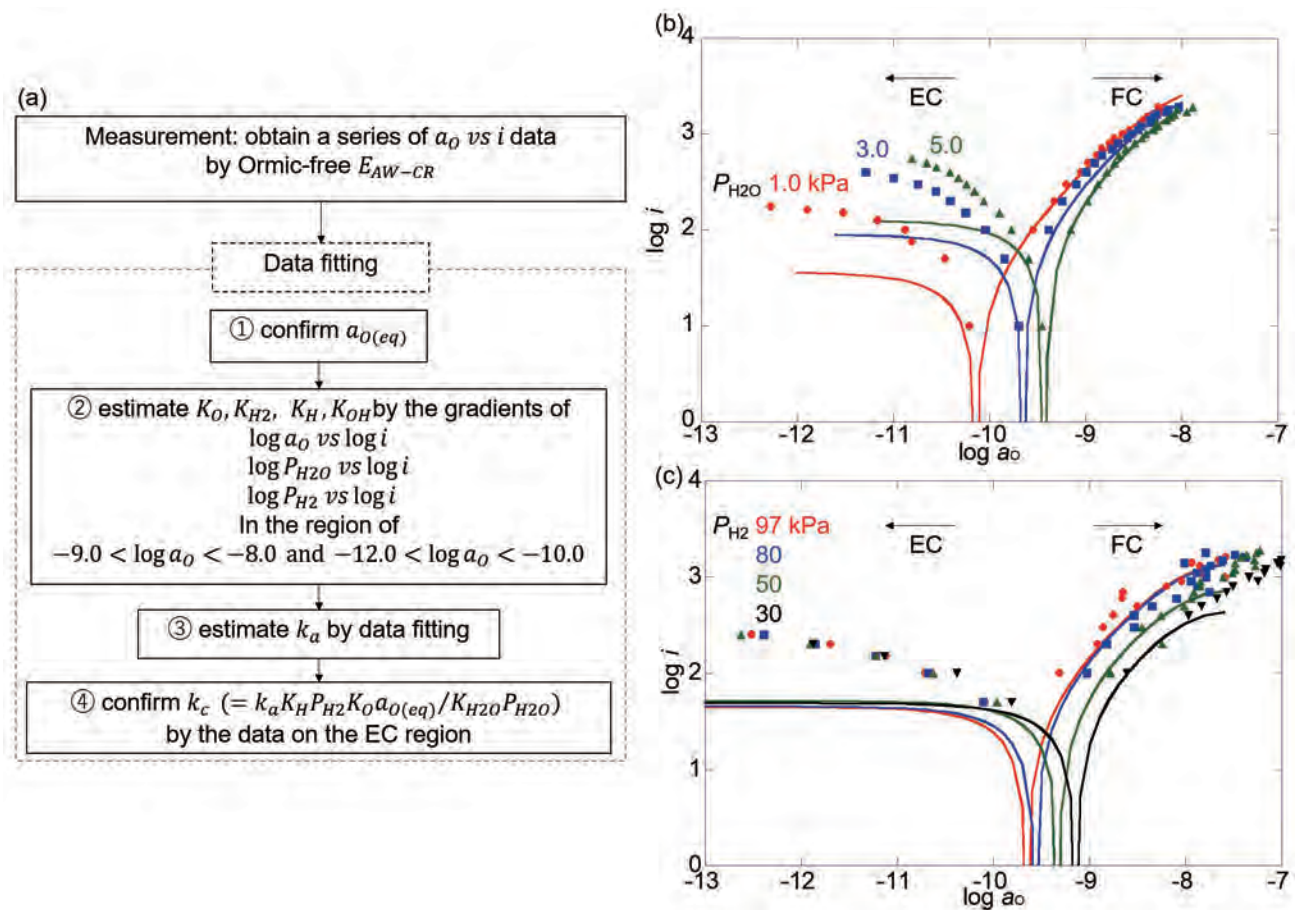


Figure 6 (a) The process flow to calculate the relationship between a_O and i . (b) The experimental data (dots) and the calculated curves (lines) of a_O vs. i at different P_{H_2O} and P_{H_2} .

electrochemically modifying the surface ad/desorption equilibrium.^[19, 20] To develop the way to quantify the relationship between O_{ad} , a_O and the relative electron activity in different material, electrode structure or temperature and to unify the kinetic model of electrolysis and power generation will be key to establish the methodology to predict the performance of SOEC from that of SOFC. In addition, when the desirable SOEC performance is predicted by using the top data of SOFC in the literature, over 5 times higher rate is supposed to be achieved compared to the previously reported values. To achieve such a high productivity of hydrogen and apply the reversible SOFC/EC for the energy storage, further theoretical and experimental studies will be necessary.

Discussion

In the first research topic, by using the real data in “ENE-Swallow”, we estimated the local hydrogen storage at the future distributed energy system with large amount of VRE installation. By a rough estimation, a surplus power by solar cells occurs at most of the sunny day if their installation ratio is over 10% of the total demand, and the surplus power becomes severe problem for the further installation of solar cell without the sufficient energy

storage. Thus, to establish the strategy for applying and managing the sufficient amount of energy storage system is an urgent issue (= not the future research topic) to avoid the suppression of the VRE installation into the society. In our study, a certain positive effect of the hydrogen energy storage system to the distributed system with 60% or 100% self-sufficiency ratio by the solar cells. On the other hand, there are some issues to install the sufficient amount of hydrogen system. One is the seasonal value of the solar power generation and the demand which influences to the usage frequency of the hydrogen tank and causes its severe cost increase. To solve the issue, to consider not only the development of the hydrogen storage system itself but also the total system is important including the installation way of solar cells, utilize the future variable electricity market and/or the additional values such as CO₂ reduction or energy safety. Another is the requirement of the electrolysis. The most expensive part next to the hydrogen tank is electrolysis modules. The hydrogen productivity, efficiency and cost themselves have a large potential for the development. The performance and longtime stability under the unsteady operation is another essential factor to balance the energy supply and the demand.

In the second topic, to apply the kinetics model of SOFC into the SOEC reaction, the way to extrapolate the rate of EC from that of FC reaction is investigated. Generally, fuel cells have been used with a steady operation with an optimum and/or mild condition and the electrolysis systems have also been used at optimum conditions. On the other hand, to use them in the variable electricity supply and demand, both the input and output power varies (almost randomly), so to operate in unsteady condition is necessary. Thus, the comprehensive understanding for the effect of the unsteady operation to the device performance and the stability are required. The requirement for EC rapidly increases as described in the first topic, but the number of the publications related to the performance of EC is less than 1/20 of FC and the simple reaction kinetics of SOEC is not sufficiently developed. In our present study, several times higher hydrogen generation rate by SOEC was observed compared to the expected value calculated from the SOFC kinetics model. To reinvestigate the chemical and electrochemical equilibrium on TPB is required and the scientific basis of the catalysis and surface inorganic chemistry helped to discuss the difference of the mechanisms between SOFC and SOEC.

Conclusions and Perspectives

Under the common target as utilizing the hydrogen energy storage in the distributed grid, we focused on two different topics: one is to evaluate the feasibility of the storage system by using the 1-min resolution real data stored in “ENE-Swallow” and another is to establish the kinetics model of SOEC from the background of SOFC. In general, these two research topics are carried out by totally different research field and those have separately developed. On the other hand, to apply the energy related technology in the future society, to develop the common scenario based on both of the point of view as the elemental technology and the total system is necessary. In order to apply a technology into the society, to understand how the materials and devices are operated in the real system and what is the real “key issue” to establish the system is important. On the other hand, to develop the management system, to know the performance of the devices under the real and unsteady condition and the limits is necessary. In other words, many positive feedbacks to each other were given by study the both topics in parallel. Our next step is to develop the energy management system which is already applied on Tokyo Tech. By establishing the way to forecast the electricity demand and unsteady supply from VRE based on the “energy big data” stored in “ENE-Swallow” and by installing the storage devices and/or systems with a best mix based on the scientific basis, a distributed grid cooperating with the central grid will be established.

Acknowledgements

A part of the research is supported by NEDO “Leading Technology Research and Development Project on Hydrogen Utilization” and JST “Mirai Project”.

References

- [1] Total System Introduction Scenario Research, Leading Technology Research and Development Project on Hydrogen Utilization (FY2016-FY2017) Final Report, NEDO.
- [2] Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking, “Development of Water Electrolysis in the European Union”, 2014
- [3] http://www.kyuden.co.jp/wheeling_disclosure.html
- [4] Guandalini G, Robinius M, Grube T, Campanari S, Stolten D, *Intl. J. Hydrogen Energy* **42** 13389 (2017).
- [5] Jaramillo LB, Weidlich A. *Appl. Energy.*, **169** 857 (2016).
- [6] 低炭素社会戦略センター, “太陽光発電システム (Vol.4) 一定量の技術シナリオに基づく太陽電池モジュールの製造コスト低下要因分析—”, 2017
- [7] 低炭素社会戦略センター, “固体酸化物型燃料電池システム (Vol.3) —将来の電源構成におけるSOFCの役割と技術開発課題—”, 2016
- [8] 株式会社富士経済, “2017年度版水素燃料関連市場の将来展望”, 2017
- [9] International Energy Agency, “Technology Roadmap Hydrogen and Fuel Cells”, 2015
- [10] A. Brisse, J. Schefold and M. Zahid, *Int. J. Hydrog. Energ.*, **33** 5375 (2008).
- [11] M. Ni, M. K. H. Leung and D. Y. C. Leung, *Int. J. Hydrog. Energ.*, **33** 2337 (2008).
- [12] L. Bi, S. Boulfrad and E. Traversa, *Chem. Soc. Rev.*, **43** 8255 (2014)
- [13] A. Bieberle, L. J. Gauckler, *Solid State Ionics* **146** 23 (2002).
- [14] H. Y. Zhu, R. J. Kee, V. M. Janardhanan, O. Deutschmann and D. G. Goodwin, *J. Electrochem. Soc.*, **152** (12) A2427 (2005).
- [15] D. G. Goodwin, H. Y. Zhu, A. M. Colclasure, R. J. Kee, *J. Electrochem. Soc.*, **156** (9) B1004 (2009).
- [16] J. Mizusaki, H. Tagawa, T. Saito, T. Yamamura, K. Kamitani, K. Hirano, S. Ehara, T. Takagi, T. Hikita, M. Ippommatsu, S. Nakagawa and K. Hashimoto, *Solid State Ionics* **70/71** 52 (1994).
- [17] C. Wen, R. Kato, H. Fukunaga, H. Ishitani, and K. Yamada, *J. Electrochem. Soc.*, **147** (6) 2076 (2000).
- [18] M. Ihara, T. Kusano and C. Yokoyama, *J. Electrochem. Soc.*, **148** (3) A209 (2001).
- [19] D. Theleritis, S. Souentie, A. Siokou, A. Katsaounis and C. G. Vayenas, *ACS Catal.* **2** 770 (2012).
- [20] F. Mateia, D. Ciuparua, C. Jiménez-Borjab, F. Doradob, J.L. Valverde and S. Brodsac, *Appl. Catal. B: Environmental* **127** 8 (2012).



Kei HASEGAWA

長谷川 馨

Assistant Professor
Department of Chemical Science and Engineering
School of Materials and Chemical Technology
Tokyo Institute of Technology
Ph. D.

High-Fidelity State-of-Charge Estimation of Li-Ion Batteries using Machine Learning

機械学習を用いたリチウムイオン電池充電状態の高精度予測

Winner 受賞者

Matthias Preindl

マティアス プレインドル

Weizhong Wang

Nicholas W. Brady

Chenyao Liao

Youssef A. Fahmy

Ephrem Chemali

Alan C. West

This paper proposes a way to augment the existing machine learning algorithm applied to state-of-charge estimation by introducing a form of pulse injection to the running battery cells. It is believed that the information contained in the pulse responses can be interpreted by a machine learning algorithm whereas other techniques are difficult to decode due to the nonlinearity. The sensitivity analysis of the amplitude of the current pulse is given through simulation, allowing the researchers to select the appropriate current level with respect to the desired accuracy improvement. A multi-layer feedforward neural networks is trained to acquire the nonlinear relationship between the pulse train and the ground-truth SoC. The experimental data is trained and the results are shown to be promising with less than 2% SoC estimation error using layer sizes in the range of 10 - 10,000 trained in 0 - 1 million epochs. The testing procedure specifically designed for the proposed technique is explained and provided. The implementation of the proposed strategy is also discussed. The detailed system layout to perform the augmented SoC estimation integrated in the existing active balancing hardware has also been given.

Key words

Aging Test, Battery Management Systems, Machine Learning, Neural Network, State-of-Charge Estimation

この論文では、稼働中の電池セルにあるパターンのパルス信号を印加することによって、これまで充電状態の予測に用いられてきた機械学習アルゴリズムを改良し強化する手法を提唱している。他の手法では非線形性が障害となって解読は困難であるが、機械学習アルゴリズムを用いればパルス応答波形に含まれる情報は解読することが可能だと信じられている。電流パルスの振幅が感度に及ぼす影響をシミュレーションによって解析することで、必要な精度向上を実現できる電流レベルを決めることが可能になる。多段階のフィードフォワードニューラルネットワークを学習させることによって、パルス列と充電状態の真値との非線形な関係を把握することができた。階層数を10から10000とし、反復回数を100万回までとして実験データを学習させた結果、誤差が2%以下で充電状態を信頼性高く予測できるという結果が得られている。この手法を用いる電池セル検査の手順を設計してその仕様を定め、解説も示している。我々が提案する検査手順を普及させる戦略についても考察し、複数の電池セルを制御する既存のバランス調整機器に組み込むだけで、充電状態をより高度に予測することを可能にするための詳細な機器配置も示した。

キーワード

加速劣化試験, 充電池管理システム, 機械学習, ニューラルネットワーク, 充電状態予測

Introduction

ACCURATE state-of-charge (SoC) estimation is necessary for optimal battery management and safe and reliable utilization of battery powered devices, such as electric vehicles (EVs) and grid level energy storage. For lithium-ion batteries, in particular, SoC estimation is difficult because the relationship between the SoC and the open-circuit voltage (OCV) is nonlinear, as can be seen in Figure 1. In certain ranges of the SoC in Figure 1, the voltage is completely flat with respect to the SoC due to phase changes occurring within the system; this makes it challenging to estimate the SoC from voltage measurements. A variety of methods have been proposed to estimate the SoC in lithium-ion batteries.

Unlike the fuel level in traditional combustion engine vehicles, the SoC cannot be directly measured in EV applications. However, the SoC is internally linked with direct measurement (voltage, current, temperature and capacity) and can be extracted by using battery intrinsic relations and/or control theory.

Open-Circuit Voltage (OCV) mapping

The techniques of estimating the SoC have been extensively investigated. The most straightforward method is to map the OCV to the SoC, as a one-to-one translation can be found between SoC and OCV under certain conditions. Given a specific OCV, the corresponding SoC can be accurately interpreted if the measured condition matches the one where the OCV-SoC map is acquired. In other words, the OCV-SoC map varies with the testing conditions, such as temperature and aging status, which introduces a significant amount of variability and can bias the SoC estimation.^[1-3] Even the direction of current flow

(charging/discharging) will affect the OCV-SoC map significantly according to.^[4] In addition, complete electrochemical equilibrium cannot be achieved within a short time frame.^[5] Therefore, while the battery is under load, it is unfeasible to perform real-time updates of the SoC based on OCV measurements. For these reasons, OCVbased SoC estimation is commonly used as a complementary or corrective method running in the background.^[6]

Coulomb-Counting

Coulomb-Counting identifies a SoC estimation technique that integrates the battery current, i.e. counts the Coulombs. Hence, it can identify an SoC difference but requires knowledge of an initial SoC value, which can be obtained with an OCV-SoC map in a well known condition. Coulomb counting (or Ah counting) integrates the current passed in/out of the battery with respect to time and converts it to the SoC using the following expression:

$$\text{SoC} = \text{SoC}_0 + \eta \int \frac{i}{C} dt \dots\dots\dots (1)$$

where SoC_0 is the initial state of the SoC; C is the present capacity of the cell. The charging/discharging efficiency is denoted as η . The current that charges/discharges the battery is i . However, the accuracy of SoC estimation would be compromised if low-res current sensors are used or the capacity is not updated as the battery ages.^[3, 7] Especially in situations where the SoC cannot be regularly corrected by OCV-based methods, the predicted SoC significantly drifts away from the true value and misleads other functions in BMS. As a result, coulomb counting is commonly used in the laboratory environment where the aforementioned uncertainties can be reasonably controlled.

Model-based observer

To reduce the uncertainties of the open-loop SoC estimation methods mentioned previously, techniques with feedback mechanisms to correct for possible bias and real-world compromises (such as sensor resolution) have been extensively investigated. Modern nonlinear state estimators and observers are commonly adopted. Particularly, Kalman-Filter (KF) based technologies,^{[6], [8-12]} recursive least square methods (RLS)^[13, 14], and slide-mode observers^[15-17] have been heavily researched as they provide reasonable estimation accuracy and relatively robust performance.

However, constructing such an observer requires precise system modeling^[13] for the specific type of battery in the system and repetitive hand tuning to select a well-behaved covariance matrix. As the battery ages, the derived battery model using a ‘fresher’ cell’s data is biased and may even be invalid. The capacity decreases while impedance

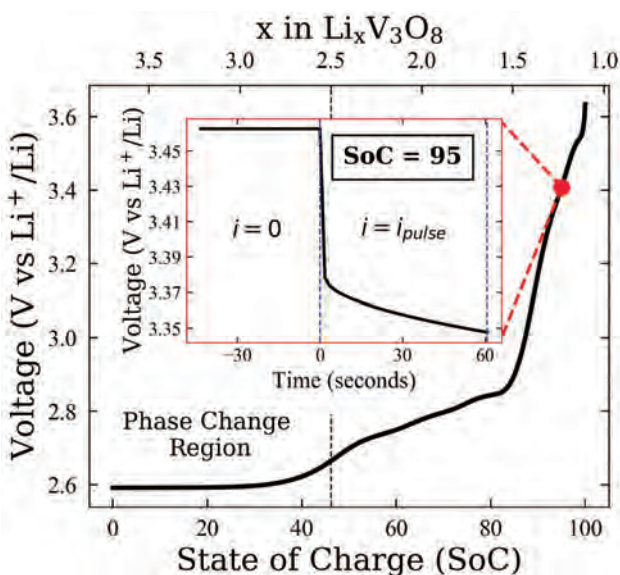


Figure 1 The simulated open-circuit voltage (OCV) of the lithium trivanadate ($\text{Li}_x\text{V}_3\text{O}_8$) electrode vs lithium metal as a function of state of charge (SoC). The inset is a representation of how the pulse is implemented for the system; this pulse was taken at SoC = 95.

increases for aged cells, which can result in an offset/error from the true SoC and even divergence of the observer. In addition, the initial states of the observer that are fed from external sources significantly affect the performance of the estimator, in terms of convergence and accuracy.

Data-driven methods

With advancements in computation and an abundance of real world data, machine learning or specifically neural network-based methods are providing researchers with the ability to achieve significant advancements in many fields.^[18-22] SoC estimation applying neural network-based methods has also drawn attention.^[23-26]

Compared to a 2% average SoC error achieved by model-based observers,^{[6], [8-12]} 4% RMS error on terminal voltage is achieved with 2-layer neural network and 30 neurons in the hidden layer.^[26] However, should further error reduction be desired, neural networks need the help of external filtering/ observer (like Kalman-filter in^[25]). Chemali *et al.* directly mapped the measurements of the cell (instantaneous and average terminal voltage, temperature, and average current) to the SOC estimation and is able to achieve a mean absolute error below 1%.^[24] This paper also showed that the number of layers and neurons had a minimal effect on the SOC estimation accuracy - a 2-layer network with 2 neurons per layer seems to be a good compromise between computational time and estimation accuracy. Nevertheless, the worst-case error through the entire test was as high as 7%.

In cases where estimation performance is limited by an OCVSoC plateau, seen in Figure 1, or when complete equilibrium of the battery is unfeasible, additional information can be gathered by injecting an augmented current profile into a battery under load. This paper hypothesizes that passing current pulses through a battery and measuring the voltage response to these pulses can be used to retrieve information about a lithium-ion battery's SoC. Because these measured electrochemical responses do not have an obvious relationship with the SoC, a neural-network can be used to learn the relationship and reconstruct the information.

This paper is organized as follows. In Section II, a previously constructed electrochemical model is used to prove the concept and provide insights of correlation between pulse amplitude and accuracy improvement. A neural network constructed using TensorFlow was tested in Section IV whether OCV measurements and current pulse information could effectively reconstruct the SoC information of the system. The testing procedure and experimental results using NMC cells captured by real-time battery testing system are shown in Section III. The hardware and software are being developed for practical implementation of the pulse derived SoC estimation in Section V. The results of the paper are summarized and proposed future

work is discussed in Section VI.

Hypothesis and Proof-of-Concept Simulation

The numerical details for the implementation of the $\text{Li}_x\text{V}_3\text{O}_8$ electrochemical model are found in refs.^[27, 28] For the current pulses done in this paper, the cathode thickness was assumed to be 500 μm , the porosity was assumed to be 0.45, with the volume fraction of active material ($\text{Li}_x\text{V}_3\text{O}_8$) being 0.48, and the volume fraction of conductive material being 0.07, and the crystal size of the active material was assumed to be 120 nm in the [001] direction.

Figure 1 shows how the OCV of $\text{Li}_x\text{V}_3\text{O}_8$ varies as a function of SoC. It is observed that the relationship between the SoC and the OCV is non-linear and in particular, when this material goes through a phase-change ($\text{SoC} \leq 50$), the OCV is constant, i.e. $\text{OCV} \neq f(\text{SoC})$. Because of the non-linearity and because of the OCV-SoC plateau, it is difficult to estimate the SoC from OCV measurements alone. Figure 2 (left - black data) shows how the estimates produced from the OCV (black) deviate from the true SoC. The OCV derived estimates are precise and accurate in the range $60 \leq \text{SoC} \leq 100$, but are imprecise and inaccurate in the range $\text{SoC} < 60$.

To gain more information about the battery and thereby obtain better estimates of the SoC, pulses were constructed by lithiating the $\text{Li}_x\text{V}_3\text{O}_8$ cathode at a current rate of $C/18$, allowing the system to rest for 2 hours, then passing a pulse current at various amplitudes and measuring the potential for 60 seconds at a sampling rate of 1 Hz. An example of the voltage measurements derived from one of these current pulses can be seen in the inset of Figure 1. Figure 2 (left - brown data) shows that the estimates derived from voltage measurements during a current pulse are more accurate and precise than the estimates from the OCV measurements, especially in the range $\text{SoC} < 60$.

Figure 2 (right) shows the relationship between accuracy

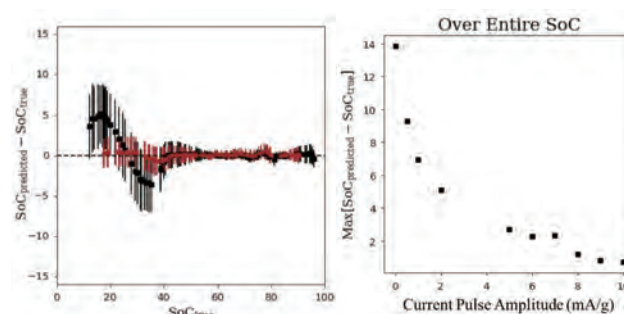


Figure 2 (Left) Deviation (and uncertainty) of the predicted SoC from their true value as a function of the true SoC. Estimates were produced from the neural network using only the open-circuit voltage data (black) and using a current pulse of 10x (brown). (Right) Maximum error of the SoC estimation produced from varying current pulses; current pulse of 0 is the estimation using OCV data and every mA/g is $C/20$.

of the SoC estimates and the amplitude of the pulse current. A pulse current of 0 corresponds to the estimate obtained using the OCV data. It is observed that as the amplitude of the injected current increases, the accuracy of the estimation improves and this improvement is most pronounced at low amplitudes. Additionally, the improvement appears to plateau at 8%. If an objective function seeks to minimize estimation error, while also minimizing the cost incurred by pulsing the system, the relationship observed in Figure 2 (right) implies that there is an optimal current to apply for this particular system. It should be noted that there is a preference toward low amplitude pulses especially in EV applications because low amplitude pulses are easier to implement through the balancing hardware.

Test Cases Design

Injecting pulses can clearly improve the robustness of SoC estimation as shown in the previous section. To build up the initial machine learning model and implement the concept in real battery systems, the pulse data sets that are used to train the neural network are first obtained in the laboratory environment. Therefore, a systematic testing procedure is proposed to ease the procedures that future researchers need to go through. The test cases basically follow the standard hybrid power pulse characterization (HPPC) test regulated by DOE^[29] but with distinguished modifications to adapt the optimized pulse amplitude as well as the facilitated aging tests, as discussed in Section II.

Testbench

The lithium nickel manganese cobalt oxide (NMC) cells are selected initially to explore the possibility of implementing machine learning. Compared with other chemistries, such as lithium cobalt oxide (LCO), NMC provides higher boost current and longer life-span and therefore is commonly used in automotive and energy storage systems.^[30]

The testbench consists of (i) real-time battery cycler with thermal couples, Neware BTS4000 series; (ii) host PC recording and uploading data to data base; (iii) NMC high-energy cells (parameters shown in Table 1). The complete system is shown in Figure 3.

The real-time battery cycler is capable of testing the cells using constant current (CC), constant voltage (CV), CCCV, and dynamic current profiles (driving cycles) with a sampling resolution of 0.1s. The hi-res measurements, including voltage, current and temperature, are uploaded to the database through the communication line with the host PC for later data process.

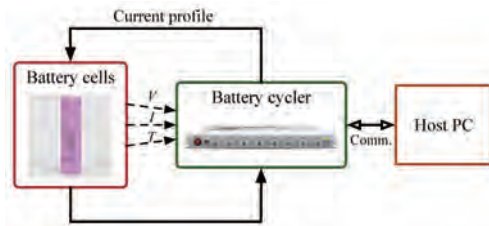


Figure 3 The overview of the testing and data acquisition system

Table 1 Cell parameters

Cell chemistry	NMC
Nominal capacity	3000 mAh
Cut-off voltage/current	2.5 V/150 mA
Maximum voltage	4.2 V
Maximum charging/discharging current	4/15 A

Capacity check

Before discussing the pulse train structure, the capacity should be checked regularly in order to interpret the SoC correctly. One of the most obvious consequences that can be observed when the battery cells are aged is the capacity fade. In addition to the uncertainties of the estimator, if the capacity is also outdated, it further degrades the accuracy of SoC estimation as the SoC and present capacity are interacting with each other according to the SoC definition in Equation 1. Note that in this paper the sign convention for the current is positive for charging and negative for discharging.

Should the accurate SoC be desired, knowing the capacity in advance is essential to train the machine learning algorithm. Capacity is often defined with the current level. Higher current (either charging or discharging) will result in lower capacity due to the internal resistance of the battery.^[31] However, in order to obtain the approximately true capacity that is available in the cell, a relatively small current rate (0.1 C-rate) is trickled in to fully charge and discharge the cell. The smaller the current rate is, the better the internal resistance can be ignored. Both charge and discharge capacity can be obtained by integrating the corresponding parts, as shown in Figure 4. Note that, this capacity should be used for back-calculating the precise SoC breakpoints in the following section.

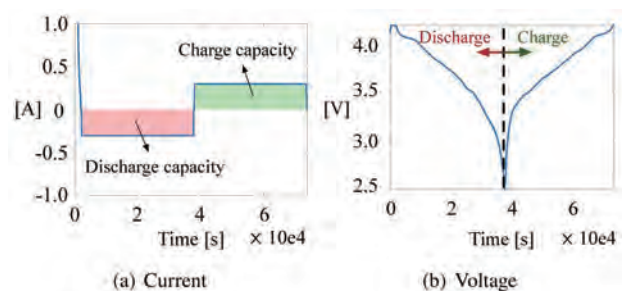


Figure 4 Capacity check

Pulse train

The pulse train needs to be carefully designed in order to maximize the information that can be extracted from limited data points. As discussed previously, the properties of the pulse determine the accuracy of the SoC estimation. It can be seen that higher current level contributes to lower estimation error. However, the feasibility of the current amplitude in the real battery system needs to be investigated. So a trade-off should be made between accuracy and feasibility. Especially in real-life EV systems, the pulses should not interrupt how the drivers drive or leave any obvious sign that the BMS is trying to reconstruct the SoC. The violation, for example but not limited to, can be unexpected acceleration. But it can be as ‘stealthy’ as a current sharing between cells when the battery needs balancing, which can be achieved by active balancing topology describe in the next section. In this paper, the current amplitude is chosen to be 1 C-rate since it potentially will decrease the error more while keeping the cells away from maximum allowed current.

The pulses are injected at every 10% SoC. Finer resolution can also be achieved but with the compromise of testing time. Firstly, the battery cells are fully charged by CCCV, followed by 1 - 2-hour rest to allow complete equilibrium inside of the battery. The battery is then discharged at 1 C-rate to 90% SoC. By allowing 1-hour relaxation before injecting pulses, the voltage response isolates the charge-transfer and/or charge diffusion effects that are induced by previous current excitation. The subsequent voltage response will be purely excited by the current pulses. If the cell is not well rested, the charge history will be coupled into the pulse response, which makes the results less accurate. A 1-min long charge pulse and discharge pulse with 1-min rest between them are injected at 90% SoC. Then the cell is discharged to 80% SoC and repeat the same sequence as it is for 90% SoC. This procedure keeps repeating until cutoff voltage is reached at any time. The sample results for testing sequence is shown in Figure 5.

Cells occasionally show strong individuality in terms of aging trends and responses to current due to the variations in manufacturing processes. Three cells are tested under same conditions as a batch to minimize the individuality by comparing and averaging the resulting data. Figure 6 illustrates the voltage responses excited by the current pulses from 90% to 20% SoC levels. The major difference among them is the voltage level where they operate gradually decreases as the cells deplete more. There are also more subtle differences which hardly can be differentiated by bare eyes but can be captured by the machine learning algorithm, for example higher voltage drops when current just applies to the cells as cells discharge. At each SoC breakpoint, the results from three cells are superimposed on each other. It shows high consistency across the entire

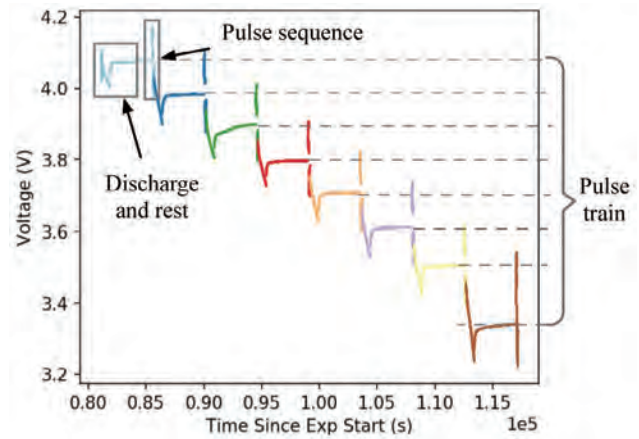


Figure 5 Pulse train with intermediate discharging and rest

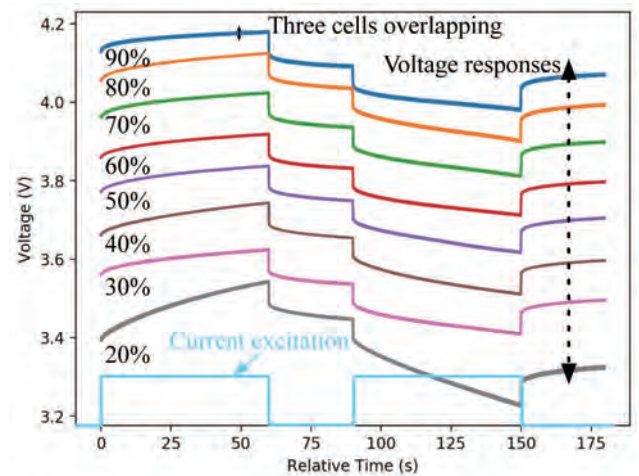


Figure 6 Superimposed cell voltage responses between 20% and 90% SoC from three cells

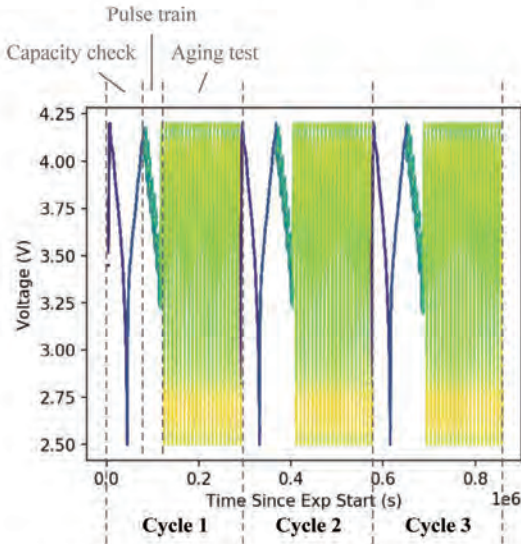
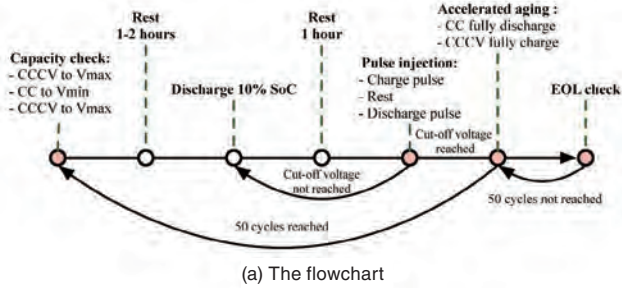
SoC test points.

Overall test procedure

As the battery ages, the performance of the model-based SoC estimators significantly degrade as they highly rely on an accurate model, especially on capacity as expressed in Equation 1. Normally, a joint estimator or a separate slow-react estimator needs to be added for capacity estimation,^[32, 33] which inevitably increases the complexity of the BMS.

Aging a battery is a time-consuming task. To accelerate the aging process, a pre-defined aging procedure is proposed here. The cells under test fully discharge with a CC at 1 C-rate, and followed by fully charge with a CC at 1 C-rate to maximum voltage and CV until current drops below 150 mA. The aging test will be terminated when the capacity reaches 80% of its original one, which is normally called end-of-life (EOL) for EV application.

Combining the capacity check, pulse train and accelerated aging test completes the testing procedure design. The entire test procedure is summarized in Figure 7.



(b) Complete test sequence captured by the battery cyclor

Figure 7 The test procedure

Machine Learning Finding the Correlation

Feedforward neural networks (FNN), shown in Figure 8 to have 2-layer and multi-layer architectures, can in principle, model most non-linear systems by mapping inputs to a desired output. In this paper, the pulse-train generated from previous tests is fed as an input to an FNN and an estimated SoC is provided as an output of the network. The network is trained by computing the difference between this estimated value and the ground-truth or ideal SoC values. Therefore, a typical input sequence will

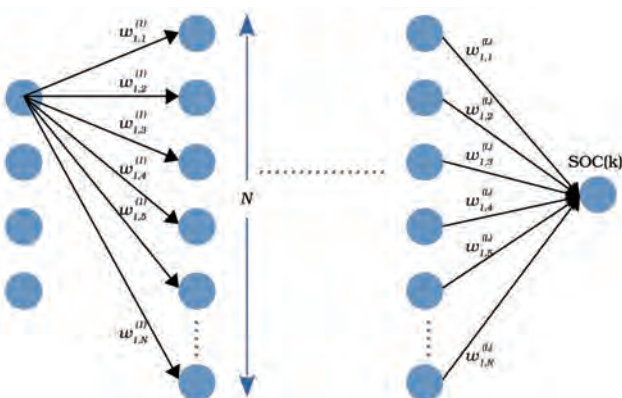


Figure 8 Architecture of Feedforward Neural Network (FNN). The input data is the vector representing the recorded pulse-train and the output of the FNN is the estimated SoC for pulse-train p .

contain pulse-train information paired with their corresponding ground-truth SoC value and can be defined by $D = \{(\psi(1), SoC(1)^*), (\psi(2), SoC(2)^*), \dots, (\psi(\tau), SoC(\tau)^*)\}$, where $SoC(p)^*$ and $\psi(p)$ are the ideal state-of-charge value and the vector representing the pulse-train input.

FNNs can be summarized by a sequence of matrix multiplication and can be represented by the below composite function. Let $w'_{j,k}$ denote the weight connection between neuron j in layer $l-1$ and neuron k in layer l . Let b'_k and h'_k be the bias and the activation function, respectively, of neuron k in layer l . The hidden layer activations can be computed as follows;

$$h'_k(p) = \eta \left(\sum_k (w'_{j,k} h'^{l-1}_j(p) + b'_k) \right) \dots\dots\dots (2)$$

where,

$$h'_k(p) = SoC(p) \quad \text{for } l = L \dots\dots\dots (3)$$

$SoC(p)$ is the estimated state-of-charge for pulse-train p . The nonlinearity used in these networks is called Rectified Linear Units (ReLU) due to its simplicity during the feedforward and backpropagation steps. The latter is given by;

$$\eta = \max(0, h) \dots\dots\dots (4)$$

The error signal measuring similarity of the estimated SoC value to the ground-truth value is given by;

$$e(p) = SoC(p) - SoC^*(p) \dots\dots\dots (5)$$

The a mean absolute error summarizes the performance of the FNN over the entire dataset and is defined by;

$$\mathcal{L} = \frac{1}{\tau} \sum_{l=0}^{\tau} (e(p)^2) \dots\dots\dots (6)$$

where τ is the length of the pulse-train. A forward pass begins when the pulses are fed into the network and is complete when the FNN provides an estimate of the SoC and the over loss is computed. A full training epoch, ϵ , includes one forward pass and one backward pass; describing the process of tuning the network weights and biases based on the loss function. This is defined by the following composite function;

$$\begin{aligned} m_\epsilon &= \beta_1 m_{\epsilon-1} \nabla \mathcal{L}(w_{\epsilon-1}) \\ r_\epsilon &= \beta_2 r_{\epsilon-1} \nabla \mathcal{L}(w_{\epsilon-1})^2 \\ \tilde{m}_\epsilon &= m_\epsilon / (1 - \beta_1^\epsilon) \\ \tilde{r}_\epsilon &= r_\epsilon / (1 - \beta_2^\epsilon) \\ w_\epsilon &= w_{\epsilon-1} - \alpha \frac{\tilde{m}_\epsilon}{\tilde{r}_\epsilon - \kappa} \end{aligned} \dots\dots\dots (7)$$

where β_1 and β_2 are decay rates set to 0.9 and 0.999, respectively, α is the learning rate and κ is a constant term

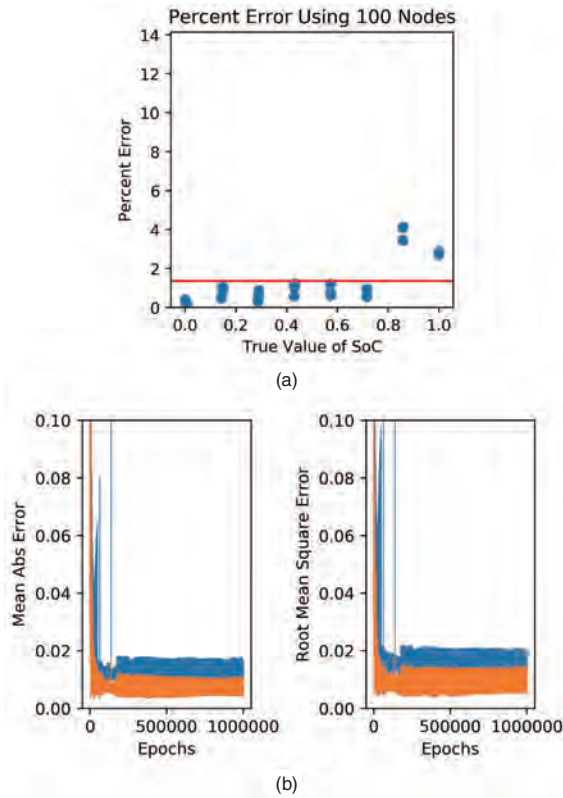


Figure 9 Estimation accuracy of a feed-forward neural network reconstructing SoC from a finite-time test sequence with $N=100$ hidden nodes. a) SOC percent error recorded as a function of ground-truth SOC values. b) Example of training process for FNNs. MAE and RMSE over training and validation datasets are recorded as a function of training epochs.

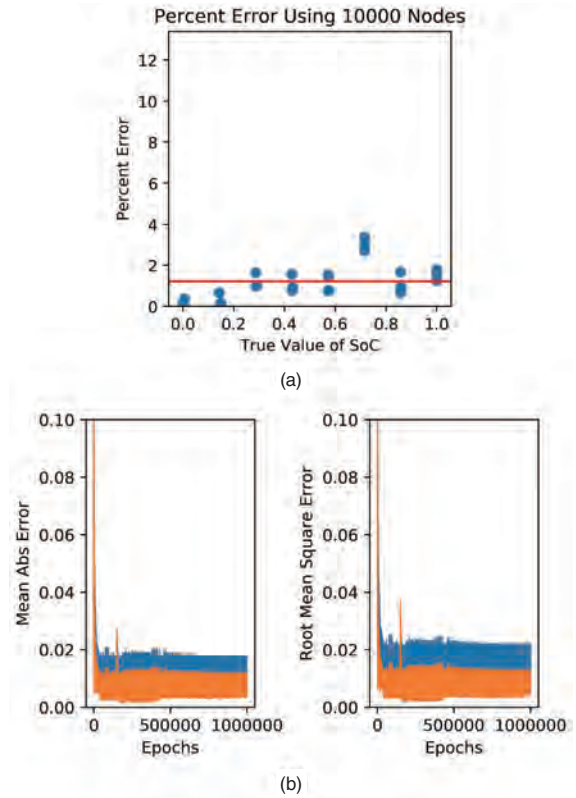


Figure 10 Estimation accuracy of a feed-forward neural network reconstructing SoC from a finite-time test sequence with $N=10,000$ hidden nodes. a) SOC percent error recorded as a function of ground-truth SOC values. b) Example of training process for FNNs. MAE and RMSE over training and validation datasets are recorded as a function of training epochs.

set to 10^{-8} .

Training of the FNN is done offline and only when network converges to a lower loss threshold can the networks be applied online. During online operation, only a forward pass is required in order to estimate SoC. Backward passes are no longer required once the model is appropriately trained. FNNs offer an advantage of faster computing time, once trained, since a forward pass is comprised mainly of a sequence of matrix multiplications.

In this paper, TensorFlow,^[34] a machine learning framework, is used with a TITAN Xp NVIDIA Graphical Processing Unit (GPU). The TensorFlow and Keras frameworks provide the ability to prototype neural networks quickly and iterate on various architectures and loss functions. These frameworks also offer automatic gradient computation thereby allowing for a seamless backward computation without any manual intervention.

An example of the training and validation process is shown in Figure 9 and Figure 10, where the estimation error is shown as a function of the true SOC values or ground-truth values in Figure 9a and Figure 10a. The mean error across the entire SOC range is well below 2% which is quite competitive compared with aforementioned model-based observers. In Figure 9b and Figure 10b, the model is trained for 10,000 epochs; training and validation MAE are shown. In this work, training typically

spanned 1 to 10 hours depending on the number of epochs chosen.

Application in Electric Vehicles

Although training is done on a GPU to capitalize on their parallel computing capability, when applying the FNNs in real world situations, a standard microprocessor can be used since, as mentioned above, the feedforward step comprises of a series of matrix multiplications.

A summary of experiment testbench to implement the proposed machine learning algorithm in real battery systems is presented. The diagram of the testbench is shown in Figure 11. Note that the DC/DC converter, illustrated

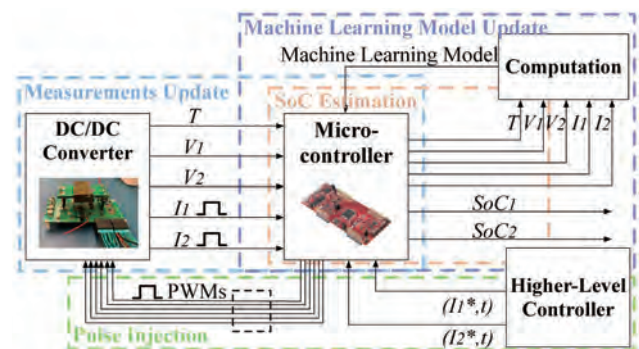


Figure 11 Machine learning algorithm implemented in real battery system

in Figure 11, has already been built. The DC/DC converter is a battery balancing circuit equipped with sensors and necessary computing unit to perform basic BMS functions.^[35, 36] In addition, the microcontroller has been integrated with the converter to perform reasonable computing work. The entire system consists of (i) the peripheral hardware (the DC/DC converter); (ii) center and localized controllers that actuates the pulse injection, necessary BMS functions and circuit operation; and (iii) powerful computing units that analyze the uploaded data and generate the machine learning model for the use of the microcontroller.

Pulse injection module

As the key novelty of the proposed concept, the pulses should be injected to the cells at the right timing with proper amplitude and duration as accurate as in laboratory environment. The higher-level controller which acts like a ‘brain’ of the BMS initially sends commands to the local microcontroller. This command describes the reference currents of the battery cells, specifying amplitude and duration of expected pulses. Once the command is received by the microcontroller, it will generate corresponding PWM pulses and pass them to DC/DC converter to actuate the pulses into the battery cells. Additionally, the property (amplitude, period, etc.) of pulses could be arbitrarily adjusted by properly controlling the converter’s behavior.

Measurements update module

The microcontroller equips high-resolution analog-to-digital converters that translates the analog signals (such as voltage/current measurements) to digital values, such that the computing unit can process them. The essential measurements (cell voltages, currents and temperatures) that are necessary inputs for the machine learning algorithm are captured and updated at the pre-defined sampling rate. Based on the sampling rate, the measurements will be continuously uploaded to the computing unit via communication protocol for further calculations of the machine learning model.

Machine learning model update

During machine learning model update, aforementioned measurements captured by the microcontroller have been transmitted to computation center either through wire or wireless. The machine learning model is iteratively trained and updated using accumulated cell information. At every pre-defined rate, the updated machine learning model is sent back to the local controllers for corrections of aging side-effects and temperature changes.

SoC estimation

As explained previously, the current pulses are injected to

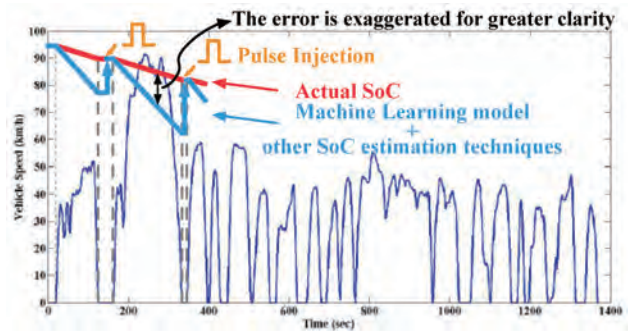


Figure 12 SoC estimation in real battery system with UDDS driving cycle^[37]

the cells through pulse injection module. The corresponding responses from battery cells are recorded by measurement update module to be used as inputs for the SoC estimation using machine learning model. The SoC estimation can be performed based on the measurement with the machine learning model, taking advantage of the simplified matrix multiplications. Two approaches using pulse injection to augment SoC estimation have been considered as candidates to update SoC estimation in real-time. 1) The machine learning model is continuously operating to obtain the SoC values in real-time. 2) machine learning model only operates at certain moments, for example when the vehicle stops at red light. Between the times when SOC estimation is updated by machine learning, other SoC estimation techniques (such as coulomb counting and EKF) can be applied to estimate SoC for those cost- and computation-constrained applications.

Figure 12 showcases how the latter method is employed in the actual battery system with UDDS driving cycle. The red line represents the actual SoC. The blue one illustrates the SoC estimation algorithm of the latter approach, where SoC resets at every point when the electric vehicle stops. After the vehicle restarts, other SoC estimation technique (such as coulomb counting or EKF) resumes. As a result, accumulated error in the previous driving period will be eliminated.

Please note that the error presented between the two SoC curves, in Figure 12, is exaggerated for greater clarity. In practice, the difference between them will be heavily dependent on the SoC estimation strategy adopted in the system and can be reduced significantly by correcting the estimated SoC more regularly.

Conclusions and Future Work

This paper introduces a new strategy to augment the performance of SoC estimation powered by neural networks. A high-fidelity electrochemical battery model is used to validate the concept of the pulse injection and demonstrate that higher current amplitudes contribute to more accurate SoC estimation. As the first batch of cell data is

usually acquired from laboratory environment, the testing procedure tailored for the pulse-injection augmentation is discussed and detailed steps are given. The method to construct FNN for mapping the pulse measurements to a ground-truth is provided. By applying FNN to the data, the SoC can be reconstructed within a error boundary of $\pm 2\%$. Thanks to the advantage of FNN, a standard micro-processor is capable of running FNNs with just simplified matrix multiplications after the model is trained, which makes real-time computing feasible. Lastly, the experimental validation platform has been demonstrated and explained. By using a BMS-ready balancing circuit that is previously developed, the pulse injection can be integrated into balancing current demands without interfering with driving behaviors.

At the time of writing this paper, the experimental setup has been completed and the experimental tests are undergoing on a scaled battery-pack. The test-bench that is representative of realworld conditions in transportation electrification and the SoC estimation results will be published. Furthermore, the authors intend to apply the proposed technique to monitor battery aging. In fact, the battery response to a time series is expected to encode a range of information on the internal behavior of the battery. Future research will study finite-time sequences that can reveal general aging information, i.e. the State of Health (SoH), as well as specific aging effects such as active material dissolution, surface layer formation, and atomic structure rearrangement.

Acknowledgement

This research was undertaken, in part, through funding from the Columbia University Data Science Institute (DSI) Seed Fund Program. It was facilitated by NVIDIA Corporation with the donation of a Titan Xp GPU. We acknowledge computing resources from Columbia University's Shared Research Computing Facility project, which is supported by NIH Research Facility Improvement grant 1G20RR030893-01, and associated funds from the New York State Empire State Development, Division of Science Technology and Innovation (NYSTAR) Contract C090171, both awarded April 15, 2010. We would also like to thank Robert C. Mohr for his contributions in the experimental setup.

References

- [1] E. Chemali *et al.*, "Electrochemical and electrostatic energy storage and management systems for electric drive vehicles: State-of-the-art review and future trends," *IEEE Journal of Emerging and Selected Topics in Power Electronics*, vol. 4, pp. 1117-1134, 2016.
- [2] W. Waag *et al.*, "Critical review of the methods for monitoring of lithium-ion batteries in electric and hybrid vehicles," *Journal of Power Sources*, vol. 258, pp. 321-339, 2014.
- [3] F. Baronti *et al.*, "State-of-charge estimation enhancing of lithium batteries through a temperature-dependent cell model," *International Conference on Applied Electronics*, vol. 0, no. 1, pp. 29-34, 2011.
- [4] M. a. Roscher *et al.*, "OCV Hysteresis in Li-Ion Batteries including Two-Phase Transition Materials," *International Journal of Electrochemistry*, vol. 2011, pp. 1-6, 2011. arXiv: ID984320.
- [5] W. Waag *et al.*, "Adaptive on-line prediction of the available power of lithium-ion batteries," *Journal of Power Sources*, vol. 242, pp. 548-559, 2013.
- [6] R. Xiong *et al.*, "SPECIAL SECTION ON BATTERY ENERGY STORAGE AND MANAGEMENT SYSTEMS Critical Review on the Battery State of Charge Estimation Methods for Electric Vehicles," *IEEE Access*, vol. 6, pp. 1832-1843, 2017.
- [7] K. S. Ng *et al.*, "Enhanced coulomb counting method for estimating state-of-charge and state-of-health of lithium-ion batteries," *Applied Energy*, vol. 86, no. 9, pp. 1506-1511, 2009.
- [8] G. L. Plett, "Extended Kalman filtering for battery management systems of LiPB-based HEV battery packs - Part 3. State and parameter estimation," *Journal of Power Sources*, vol. 134, pp. 277-292, 2004.
- [9] W. Wang *et al.*, "Comparison of Kalman Filter-based State of Charge Estimation Strategies for Li-Ion Batteries," in *IEEE Transportation Electrification Conference and Expo (ITEC)*, Dearborn, MI, 2016, pp. 1-6.
- [10] Y. Dai *et al.*, "Capacity Fade Model for Spinel LiMn2O4 Electrode," *Journal of the Electrochemical Society*, vol. 160, no. 1, A182-A190, 2012.
- [11] S. Sepasi *et al.*, "Improved extended Kalman filter for state of charge estimation of battery pack," *Journal of Power Sources*, vol. 255, pp. 368-376, 2014.
- [12] G. Plett, "Dual and Joint EKF for Simultaneous SOC and SOH Estimation," in *Proceedings of the 21st Electric Vehicle Symposium (EVS21)*, Monaco, pp. 1-12, 2005.
- [13] H. He *et al.*, "Online model-based estimation of state-of-charge and open-circuit voltage of lithium-ion batteries in electric vehicles," *Energy*, vol. 39, no. 1, pp. 310-318, 2012.
- [14] B. Xia *et al.*, "Online parameter identification and state of charge estimation of lithium-ion batteries based on forgetting factor recursive least squares and nonlinear Kalman filter," *Energies*, vol. 11, no. 1, 2018.
- [15] B. Ning *et al.*, "A sliding mode observer SOC estimation method based on parameter adaptive battery model," *Energy Procedia*, vol. 88, pp. 619-626, 2016.
- [16] A. Belhani *et al.*, "Adaptive sliding mode observer for estimation of state of charge," *Energy Procedia*, vol. 42, pp. 377-386, 2013.
- [17] C. Liu *et al.*, "A new method of modeling and state of charge estimation of the battery," *Journal of Power Sources*, vol. 320, pp. 1-12, 2016.
- [18] A. Krizhevsky *et al.*, "ImageNet Classification with Deep Convolutional Neural Networks," *Advances In Neural Information Processing Systems*, pp. 1-9, 2012.
- [19] D. CireşAn *et al.*, "Multi-column deep neural network for traffic sign classification," *Neural Networks*, vol. 32, pp. 333-338, 2012.
- [20] G. Hinton *et al.*, "Deep neural networks for acoustic modeling in speech recognition: The shared views of four research groups," *IEEE Signal Processing Magazine*, vol. 29, no. 6, pp. 82-97, Nov. 2012.

- [21] J. Ma *et al.*, “Deep neural nets as a method for quantitative structure-activity relationships,” *Journal of Chemical Information and Modeling*, vol. 55, no. 2, pp. 263-274, 2015.
- [22] Z.-K. Wang *et al.*, “Graphene-nanosheet-wrapped LiV₃O₈ nanocomposites as high performance cathode materials for rechargeable lithium-ion batteries,” *Journal of Power Sources*, vol. 307, pp. 426-434, Mar. 2016.
- [23] E. Chemali *et al.*, “Long short-term memory-networks for accurate state of charge estimation of li-ion batteries,” *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, vol. 65, pp. 6730-6739, 2018.
- [24] E. Chemali *et al.*, “State-of-charge estimation of li-ion batteries using deep neural networks: A machine learning approach,” *Journal of Power Sources*, vol. 400, pp. 242-255, 2018.
- [25] J. Du *et al.*, “State of charge estimation for Li-ion battery based on model from extreme learning machine,” *Control Engineering Practice*, vol. 26, no. 1, pp. 11-19, 2014.
- [26] M. Charkhgard and M. Farrokhi, “State-of-charge estimation for lithium-ion batteries using neural networks and EKF,” *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, vol. 57, no. 12, pp. 4178-4187, 2010.
- [27] N. W. Brady *et al.*, “Discharge, Relaxation, and Charge Model for the Lithium Trivanadate Electrode: Reactions, Phase Change, and Transport,” *Journal of the Electrochemical Society*, vol. 163, no. 14, pp. 2890-2898, 2016.
- [28] N. W. Brady *et al.*, “Operando Study of LiV₃O₈ Cathode: Coupling EDXRD Measurements to Simulations,” *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 165, no. 2, A371-A379, Feb. 2018.
- [29] The Idaho National Laboratory, “U.S. Department of Energy Vehicle Technologies Program Battery Test Manual For Plug-In Hybrid Electric Vehicles,” 2014.
- [30] Battery University. (2019). Types of Lithium-ion Batteries, [Online]. Available: https://batteryuniversity.com/learn/article/types_of_lithium-ion (visited on 08/25/2019).
- [31] W. Wang, “Modeling, Estimation and Benchmarking of Lithium Ion Electric Bicycle Battery,” Master’s thesis, Department of Electrical and Computer Engineering, McMaster University, Hamilton, ON, Canada, 2016, p. 149.
- [32] W. Wang *et al.*, “Sensitivity Analysis of Kalman filter Based Capacity Estimation for Electric Vehicles,” *IEEE Transportation Electrification Conference*, pp. 1-7, 2015.
- [33] Y. Zou *et al.*, “Combined State of Charge and State of Health estimation over lithium-ion battery cell cycle lifespan for electric vehicles,” *Journal of Power Sources*, vol. 273, pp. 793-803, 2015.
- [34] M. Abadi *et al.*, “Tensorflow: Large-scale machine learning on heterogeneous systems, 2015. url h ttp,” *Software available from tensorflow.org*,
- [35] W. Wang and M. Preindl, “Modeling and control of a dual cell link for battery-balancing auxiliary power modules,” in *IEEE Applied Power Electronics Conference and Exposition (APEC)*, 2018, pp. 3340-3345.
- [36] W. Wang and M. Preindl, “Design and Implementation of a Dual Cell Link for Battery-Balancing Auxiliary Power Modules,” in *IEEE Transportation Electrification Conference and Expo (ITEC)*, 2018, pp. 898-903.
- [37] T. J. Barlow *et al.*, “A reference book of driving cycles for use in the measurement of road vehicle emissions,” *The Future of Transport*, Tech. Rep., 2009, p. 284.

Winner

**Matthias Preindl**

マティアス プレインドル

Assistant Professor
Department of Electrical Engineering
Columbia University in the City of New York
Ph.D.

Weizhong Wang

Department of Electrical Engineering
Columbia University in the City of New York

Nicholas W. Brady

Department of Electrical Engineering
Columbia University in the City of New York

Chenyao Liao

Department of Electrical Engineering
Columbia University in the City of New York

Youssef A. Fahmy

Department of Electrical Engineering
Columbia University in the City of New York

Ephrem Chemali

Department of Chemical Engineering
Columbia University in the City of New York

Alan C. West

Department of Chemical Engineering
Columbia University in the City of New York

リチウムイオン電池の現状と未来

Current Situation of a Lithium Ion Battery and Future

吉野 彰

Akira YOSHINO

技術研究組合リチウムイオン電池材料評価研究センター (LIBTEC)

理事長 博士 (工学)

President

Lithium Ion Battery Technology and Evaluation Center (LIBTEC)

Ph. D.



リチウムイオン電池は小型・軽量化を実現した二次電池であり、現在のモバイルIT社会の実現に大きな貢献をしてきた。このリチウムイオン電池の仕組み、特徴、構成材料、電池構造、電極構造を解説する。モバイルIT用途分野(小型民生用途)における25年以上の市場実績とともに、電池性能の向上、信頼性の向上、コストダウンの実現がなされてきた。そして現在、車載用(電気自動車用)という次の転換期を迎えている。単に車が電動化されるということだけではなく、リチウムイオン電池がIoT、AI、5Gといった未来技術と融合した時に起こる大きな社会変革が予想される。この未来の車社会についても述べてみたい。

A lithium ion battery is small and lightweight secondary batterie, and has greatly contributed to the realization of the current mobile IT society. The mechanism, features, constituent materials, battery structure and electrode structure of this lithium ion battery are explained. Along with 25 years of market results in mobile IT applications (small consumer applications), improvements in battery performance, improved reliability, and cost reduction have been realized. And now we are facing the next turning point of automotive (for electric vehicles). Not only that cars will be motorized, but also significant social change that will occur when lithium ion batteries merge with future technologies such as IoT, AI, 5G. I would like to talk about this future car society.

はじめに

リチウムイオン電池は小型・軽量化を実現した二次電池であり、現在のモバイルIT社会の実現に大きな貢献をしてきた。現在ではほぼすべてのモバイルIT機器の電源として世界中で用いられている。このリチウムイオン電池の市場状況、電池の仕組み、特徴、構成材料、電池構造、電極構造を解説する。こうしたモバイルIT用途分野(小型民生用途)における25年以上の市場実績により、電池性能の向上、信頼性の向上、コストダウンの実現がなされてきた。こうした市場実績によりリチウムイオン電池は車載用(電気自動車用)という次の転換期を迎えている。このリチウムイオン電池の現状と未来について述べる。

リチウムイオン電池とは

まずはリチウムイオン電池の特徴、仕組みと構成材料、構造について簡単に紹介したい。

電池の分類

リチウムイオン電池の説明の前に電池の分類について述べたい。現在、世の中で実用化されている電池の大半はTable 1に示すように4種類に分類される。

Table 1 Classification of batteries

	水系電解液	非水系有機電解液 (高エネルギー・ 高容量・高電圧)
一次電池 (再使用不可)	マンガン乾電池 アルカリマンガン乾電池	金属リチウム一次電池
二次電池 (充電再使用可)	鉛蓄電池 ニカド電池 ニッケル水素電池	リチウムイオン電池 (LIB*)

*Lithium Ion Battery

一つ目の分類軸は一次電池と二次電池である。一次電池とは、一度使い切ると再使用できない使い捨ての電池である。二次電池とは一度使い切った後、充電することにより再使用可能な電池である。二つ目の分類軸は電解液である。電解液とはイオンを含んだ溶液のことであり電池を機能させ

るのに必須の材料である。これまでの電池では、この電解液の溶媒として水が用いられてきた。これを水系電解液という。例えば我々が身近に使用している乾電池は水系一次電池である。また、昔から用いられてきている鉛蓄電池、ニカド電池、ニッケル水素電池などは水系二次電池である。水という溶媒は塩を良く溶かし、溶解したイオンが速く動くので電解液として理想的な溶媒であった。しかしながら、この水系電解液には致命的な問題点があった。それは水という化合物は約1.5 V以上の電圧がかかると水素ガスと酸素ガスに電気分解してしまうという点であった。電池を小型・軽量化しようとしたときに電池の起電力(電池の電圧)を高くすることが必須の条件となる。したがって、水系電解液を用いた電池の小型・軽量化には限界が有ったのである。この点を改良するものとして提案されたのが非水系電解液である。非水系とは水の代わりに有機溶媒を用いた電解液である。この非水系電解液にすることにより約5 Vまでの高電圧に耐えるようになった。この非水系電解液が最初に実用化に至ったのは非水系一次電池であった。金属リチウムを負極に用い、起電力が約3 Vの非水系金属リチウム一次電池が1970年初頭に商品化された。この商品化により一次電池については小型・軽量化が実現した。次に二次電池の小型・軽量化が必要となり、非水系二次電池の研究開発が盛んに行われたが、その商品化は困難を極めた。その困難を乗り越えて1991年に商品化に成功したのがリチウムイオン電池である。このリチウムイオン電池は4 V以上という従来の水系電池の約3倍の起電力を有するものであり、この商品化により待望の二次電池の小型・軽量化が実現した。

リチウムイオン電池の特徴

リチウムイオン電池の最大の特徴は小型・軽量である。小型というのは同じ電気を蓄えるのに必要な体積を小さくでき、体積エネルギー密度(単位はWh/L)が高くなることを意味する。1 Lの体積の電池に蓄えることが可能な電力量(Wh/L)を示す。軽量というのは同じ電気を蓄えるのに必要な重量を小さくできることであり、重量エネルギー密度(単位はWh/kg)が高くなることを意味する。1 kgの重量の電池に蓄えることが可能な電力量(Wh/kg)を示す。リチウムイオン電池の体積エネルギー密度と重量エネルギー密度を他の二次電池と比較するとFigure 1のとおりである。

リチウムイオン電池の体積エネルギー密度も重量エネルギー密度もともに、従来の水系電解液二次電池であるニカド電池、ニッケル水素電池に比べて約3倍となっている。こうしたリチウムイオン電池の小型・軽量という特徴がモバイルIT機器の電源として用いられている最大の理由である。

リチウムイオン電池の仕組みと構成材料

それではリチウムイオン電池とはどのようなものであろう

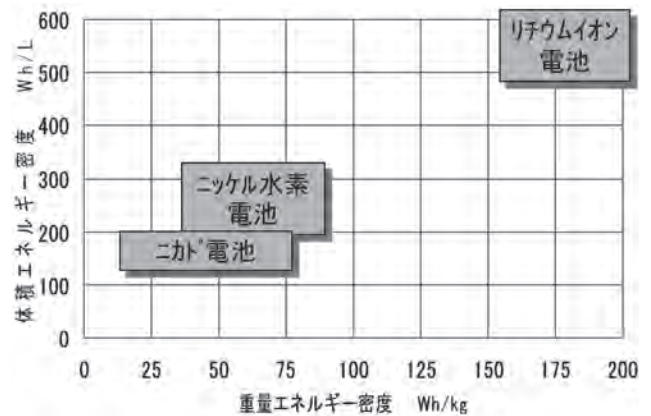


Figure 1 Energy density characteristics of secondary batteries

か。リチウムイオン電池の狭義な定義は“カーボン材料を負極活物質にし、リチウムイオン含有遷移金属酸化物(LiCoO₂など)を正極とする非水系電解液二次電池”である。電池の基本構成要件は正極材料と負極材料の組合せである。リチウムイオン電池の重要な要素技術の一つとして負極にカーボン材料を用いるという点が挙げられる。これまで乾電池等でもカーボン材料が用いられているが、この場合のカーボン材料は電気導電性を付与する補助的な材料であって、電池反応に直接機能しているものではなかった。リチウムイオン電池の場合には負極カーボン材料そのものが負極材料として機能する初めての電池である。

Figure 2を用いて簡単に説明すると、正極に存在するリチウムイオンが充電により負極カーボン材料の中に入り(層間挿入反応)、逆に放電によりリチウムイオンが負極カーボン材料の外に出ていくこと(層間脱離反応)が電池基本反応となっている。このように化学的反應ではなく、リチウムイオンの挿入・脱離反応が起こるだけなので充電放電を繰り返しても副反応が起こらない。このことは二次電池のサイクル寿命(充電放電を繰り返すことができる回数)を大幅に長くできることにつながる。さらに重要な点は化学反

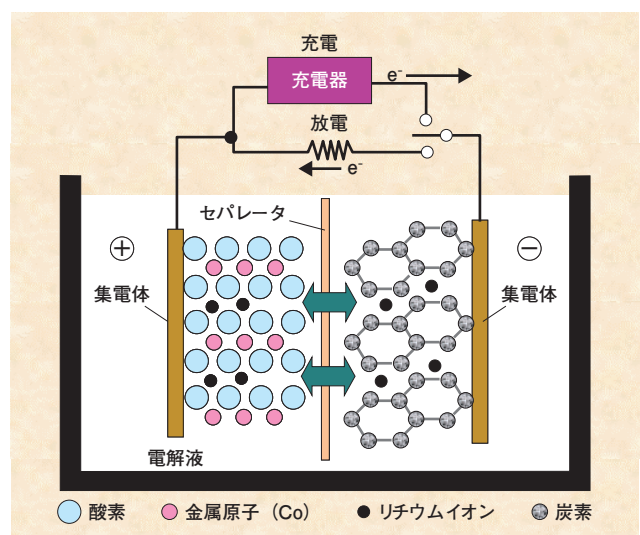


Figure 2 Electrochemical mechanism of lithium ion battery

応性の高い金属リチウムではなく、安定なリチウムイオンのみが機能するので安全性を実用レベルに到達させたことである。もう一つの重要な要素技術は正極材料にリチウムイオン含有遷移金属酸化物(LiCoO₂など)を用いる点である。リチウムイオン含有という要件が重要であり、この正極に含まれているリチウムイオンが充放電中に重要な役割を果たしている。リチウムイオンを含んでいない正極材料とカーボン負極を組み合わせても、当然のことながら電池としては機能しない。また、リチウムイオン含有遷移金属酸化物を正極に用いることで4 V以上の起電力を生み出すことが可能となっている。

リチウムイオン電池の構造

次にリチウムイオン電池の主要構成材料と構造について説明する。Figure 3に示す正極材料、負極材料、セパレータ、電解液の4つがリチウムイオン電池の主要構成材料である。正極材料、負極材料ともに平均粒径1~10 μmの粉末である。

この粉末状の材料を集電体の両面に塗布して電極として用いる。正極の集電体にはアルミ箔が用いられ、一方、負極の集電体には銅箔が用いられる。集電体に金属箔を用いるのはリチウムイオン電池独特の電極構造であり、小型・軽量化の実現に大きな貢献をしている。この正負電極の間にセパレータを挟んで捲回(けんかい)する。セパレータは電気絶縁性とイオン透過性が両立することが必要であり、0.1 μm以下の微細孔を有するポリエチレンフィルムが用いられている。この捲回体を電池缶に挿入した後に電解液を注入してリチウムイオン電池ができあがる。電解液はセパレータの微細孔に含浸され、リチウムイオンがセパレータを透過できるようになる。リチウムイオン電池で用いられる電解液は炭酸エチレン、炭酸プロピレンなどの環状炭酸エステルと炭酸ジエチルや炭酸ジメチルのような鎖状炭酸エステルとの混合溶媒にLiPF₆のようなLi塩を溶解したものである。誘電率の高い環状炭酸エステルはリチウムイオンの解離に重要な役割を果たしている。また、粘度の低い

鎖状炭酸エステルを混合することにより、解離したリチウムイオンの移動速度を速める役割を果たしている。

モバイルIT機器を支えるリチウムイオン電池

小型・軽量性を特徴とするリチウムイオン電池は商品化以降これまで主として小型民生用途(Mobile-IT Market)分野で広く使われてきている。小型民生用の2016年時点での用途別生産数量はFigure 4に示すとおりである。

現在、リチウムイオン電池は小型民生用途で約40億個も生産販売されている。その中で最も多いのはスマートフォンを含む携帯電話である。ここで携帯電話の歴史を簡単に振り返り、その普及にリチウムイオン電池が如何に大きな貢献をしてきたかについて述べる。1985年に登場したショルダーホンと称される通信機器が携帯電話の原点である。その名のとおりに、携帯電話というよりも、元々は据え置き型の自動車電話を肩に掛けて携帯するというもので、重量は約3 kgもあった。その後、1991年に当時のNTTのムーバを皮切りに現在の携帯電話につながる製品が発売されるようになった。これが第一世代携帯電話(1G)と称されている。このとき電源として用いられていたのは主にニッケル水素電池であったが、ごく一部の機種に市販されたばかりのリチウムイオン電池が初めて搭載されている。この第一世代の携帯電話はアナログ方式で、用いられていたIC回路の駆動電圧は5.5 Vであった。したがって、電源は起電力1.2 Vのニッケル水素電池の場合には5本直列で設計され、起電力4.2 Vのリチウムイオン電池では2本直列で設計されていた。その後、数年間はニッケル水素電池とリチウムイオン電池が併用され続けてきたが、携帯電話が第二世代(2G)に移行すると状況が一変した。第二世代では方式がアナログからデジタルに変わるとともにIC回路の駆動電圧が5.5 Vから3 Vに低電圧化された。したがって、電源はニッケル水素電池の場合には3本直列、リチウムイオン電池では1本で設計されることになった。リチウムイオン電池1本で電源設計できるのは極めて大きな利点であり、これを契機に携



Figure 3 Main components and structure of lithium ion battery

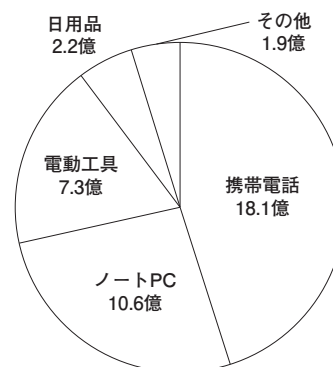


Figure 4 Production volume of small type consumer lithium-ion batteries

携帯電話の電源がすべてリチウムイオン電池に置き換わっていった。こうして携帯電話は小型軽量化が実現し、IT変革のスタートの年となる1995年以降本格的普及していった。さらに第三世代携帯電話(3G)への進化、スマートホンの登場を経て現在に至っている。このように小型軽量を特徴とし、4.2Vという高起電力を有するリチウムイオン電池は携帯電話の普及、さらにはIT社会の実現に大きな貢献をしてきたのは間違いのない。

車を変えていくリチウムイオン電池

車載用リチウムイオン電池の市場の現状分析を行い、未来に向けてどのように動いていくかについて述べたい。

車載用リチウムイオン電池市場の現状

Figure 5はリチウムイオン電池のモバイルIT向けと車載向け(xEV)の市場実績(単位はGWh)の推移を示す。

2010年頃からリチウムイオン電池の車載用途への展開が始まったが、しばらくは本格化しなかった。当初期待されていたほどには普及が進んでこなかったというのが現実である。その理由としてコストの問題、1充電あたりの走行距離の問題があげられ、2014年時点でNissan Leaf, Tesla Model Sなど限定されたメーカー、車種しか市販されていなかった。少し変化が見え始めたのが2015年であり、この年から急激に伸び始めた。その背景として2018年から車に対する厳しい環境規制が課せられることになったという点が挙げられる。中国ではPM2.5などの環境対策として電気自動車の普及を国策的に進めてきたこと、またこれまで消極的であった欧州の自動車メーカーが車の電動化に大きく舵を切ったのが大きな変化である。そして2017年には僅差であるが車載用がモバイルIT用途を逆転した。2018年以降も急激な増大を示しており、2025年には車載用がモバイルIT用途の7-8倍の市場になるであろうと予測されている。

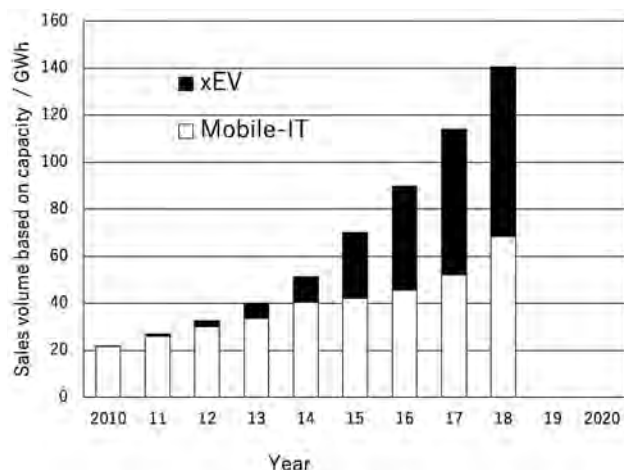


Figure 5 Sales trend of automotive lithium ion batteries

このような状況から将来の車社会を示唆するキーワードを以下に示す。

- ① 中国のEV市場が定着するかどうか
- ② 米国EVメーカーTeslaなどの新興勢力の行方
- ③ Industry4.0とも称される第4次産業革命との融合

AI, IoT, 5Gなどの新技術がEVとの連動であり、特に注視すべきは Tesla Model S 以降の車種では自動運転機能が標準装備されているという点である。現在の法規では完全な無人自動運転は認められていないが、このModel Sで将来の完全自動運転に向けた壮大な実証試験が行われているという見方もできる。キーワードの一つはこの無人自動運転技術である。2025年から2030年に本格的普及を目指して開発が進められている。

未来の車社会に向けた二つのシナリオ

未来に向けて車の技術は大きな進化を遂げていくと予想されている。そうした車の技術進化と融合しながら電動化が進んでいくと見られており、二つのシナリオが描かれている。

前述したようにリチウムイオン電池の技術改良が進み、走行距離の問題、コストの問題が解決され車の電動化が進み、最終的に電動化率が100%になっていくというのがシナリオ1である。近年、上記シナリオ1と異なる別のシナリオ2が囁かれている。車の知能化が進み無人自動運転が実現することにより、車の個人所有が無くなり共有化されていく、これと車の電動化とが融合しAIEV(Artificial Intelligence Electric Vehicle)という概念の車社会が生まれるというのがシナリオ2である。これが実現すると地球環境への貢献と共有化による画期的な費用負担低減が両立するという世界が描かれている。シナリオ2で大事なことは社会的メリットと個人的メリットが両立するという点にある。一般的に地球環境に貢献できる技術、製品は消費者負担、即ちコストアップが伴うというのが宿命であった。しかしながら、シナリオ2では地球環境への貢献と画期的な価格破壊が両立する。さらに過疎化対策、少子高齢化対策、事故の激減、渋滞の激減などの大きな社会的メリットがもたらされる。

将来、この二つのシナリオのいずれが実現していくのかは現時点では判断できないが、車の技術は未来に向けて驚くような進化を遂げていくと考えられる。その中で、更なる電池技術の進化が要求されていくであろう。

おわりに

リチウムイオン電池の現状と未来について述べてきた。ここにきてリチウムイオン電池は次のステージを迎えつつある。リチウムイオン電池は商品化以降、携帯電話やノートPCなどの小型民生用途分野で25年以上の市場実績を積み

重ね、この間にさらなる性能、信頼性の向上、価格低下の実現がなされてきた。この市場実績からリチウムイオン電池の車載用途分野への展開が始まっている。リチウムイオン電池は将来的に車を大きく変えていくであろう。

モデルベースシステムズエンジニアリング (MBSE) のすゝめ — 「はかる」, 「つなぐ」 を考える —

Model-Based Systems Engineering (MBSE)
- “To Measure” and “To Connect” -

西村 秀和

Hidekazu NISHIMURA

慶應義塾大学大学院 システムデザイン・マネジメント研究科
研究科委員長・教授 工学博士

Professor

Dean of Graduate School of System Design and Management Keio University

Ph. D.



近年の製品やサービスは非常に複雑なものとなっており、企業は限られたコストの中で、環境規制に対処し、安全を確保しなければならず、地域向けにカスタマイズすることが求められることが多い。こうした複雑な製品やサービスなどのシステムを成功裏に実現するために、モデルベースシステムズエンジニアリング(MBSE)のアプローチが注目されている。自動運転システムを含む自動車のような複雑なシステムのライフサイクル全体にわたる確実なエンジニアリング活動全体を実現するには、何をすれば良いか？コンセプト、アーキテクチャおよび設計の定義を行う際には、必ず、検証と妥当性確認が必要となる。「はかる」、「つなぐ」をMBSEの観点から論じる。

In recent years, products and services have become extremely complex, and enterprises must address its environmental regulations, ensure its safety within limited costs and often are required to customize those for the area. Model-based systems engineering (MBSE) approach has been attracting attention in order to realize systems such as complex products and services successfully. What should we do to realize rigorous engineering activities through the entire life cycle of complex systems like vehicles including automated driving systems? When defining concept, architecture and design of a system, verification and validation must be required. “To measure” and “to connect” are discussed from the viewpoint of MBSE.

はじめに

近年の製品やサービスはメカ、電気、ソフトウェアなどから成り、特に自動車は、限られたコストの中で、環境規制に対処し、安全を確保しなければならず、また、地域の市場に合わせてカスタマイズするいわゆる派生開発が求められることが多い。さらにMaaS(Mobility as a Service)^[1]をはじめ自動車関連のサービスを積極的に提供する動きが活発になっている。企業はこうした複雑な製品やサービスを成功裏に実現する必要がある、そこに関連するエンジニアリング活動は複雑さを増している。

複雑な製品やサービスなどのシステムを成功裏に実現するために、モデルに基づくシステムズエンジニアリング(MBSE)のアプローチが注目されている^[2, 3]。従来の文書を中心としたシステムズエンジニアリングでは、複雑なシステムの記述を十分に行うことは難しく、また、エンジニア間でこれらの関連情報をやりとりすることは容易ではな

かった。システムモデルを用いて対象のシステムを記述することで対象のシステムを規定し、システム要求の定義、システムアーキテクチャの定義、設計定義のプロセスを双方向にトレーサビリティがとれる形で進めることができる。また、システムモデル記述は検証および妥当性確認のプロセスで活用できる。

今後、自動運転システムを含めた進化が求められる自動車には、そのライフサイクル全体にわたる確実なエンジニアリング活動の実現が求められている。環境と安全確保の問題は、ますます高いレベルでの解決が求められるものと考えられる。では、そのためには何を準備しておく必要があるだろうか？複雑なシステムの開発を着実に行うためには、コンセプト、アーキテクチャそして設計が、相互にトレーサビリティがとれた形で定義されることが求められる。それぞれのプロセスでは検証と妥当性確認が必要となり、システムをコンポーネントから統合する過程でも同様に検証と妥当性確認が必要となる。さらに近年では、特に

ソフトウェア分野で、製品の運用(Operation)中にそこに組み込まれたソフトウェアを開発(Development)すること(DevOpsという)が求められている^[4]。

こうした背景から、システムの検証と妥当性確認を実現するシステムの存在が重要になる。自動車を設計し製造するエンジニアが、自動車あるいは自動車を構成する要素の検証および妥当性確認を行いたいと考えたときに、これを実現するシステムをどのようにつくると良いのか?そこでは、何のために何を「はかる」必要があるのか?何のために何を「つなぐ」必要があるのか?検証と妥当性確認でのテストケースをどのように定めたら良いのか?これらの多くの課題に速やかに解決策を導き出すことは容易なことではないし、これに対する解をMBSEが持つ訳ではない。しかし、MBSEの中でアーキテクチャ定義を行うことは極めて重要な意義をもち得ると考えている。ここではその観点から論じてみたい。

システムズエンジニアリングの開発プロセス^[2, 3]

製品やサービスなどは、『1つ以上の定められた目的を達成するために編成された相互作用する要素の組み合わせ』である、いわゆるシステムとして考えることができる。システムは、コンセプトを検討する段階から開発、製造、運用、保守、廃棄にいたるライフサイクルステージを持ち、それぞれのステージで対象のシステムを実現するために必要となるシステムが存在する。すなわち、製品やサービスなどのシステムを実現するには、機械、電気などのハードウェア、これらを適切に動作させるソフトウェアのみならず、人、設備などを必要とし、これらをどのようにマネジメントしていくかが、製品やサービスの成否に大きな影響を与える。

こうした複雑なシステムを成立させるために、主として技術的な面から取り組むためのアプローチあるいは手段として、システムズエンジニアリングがある。近年では、システムが複雑になってきたことから、文書を中心としてシステムの記述を行うアプローチに代わり、モデルを用いたアプローチ、すなわちMBSEが注目を浴びている。ここでモデルには、対象のシステムを記述する範囲を決めるための幅、深さおよび忠実度がある。モデルの幅は、機能、インタフェース、性能、制約、品質特性などのシステム要求の適用範囲を反映する。モデルの深さは、システムコンテキストからシステム要素までの分解方向の範囲である。モデルの忠実度はモデルが表現する詳細さのレベル

を示す。このモデルの種類として、形式的モデルには論理モデル、定量モデル、幾何学モデルがある。また、非形式的モデルとして描画および文書があるが、これらには正確さに欠ける曖昧な表現が含まれる可能性があることを考慮する必要がある。

例えば、自動車に搭載されている内燃エンジンは、様々な環境規制が課せられ、極めて複雑なシステムとなっている。このエンジンシステムを実現する過程で、システムズエンジニアリングの初期の段階ではエンジンシステムのアーキテクチャを定義することが重要となる。さらにエンジンテストベンチ上での試験が繰り返し実施され、燃費性能や排ガス性能の適合、テストが行われる。このため、エンジンテストベンチはエンジンを実現するために必要なシステムということができる。そして、このエンジンテストベンチを開発する際には、エンジンシステムの初期の段階で定義したアーキテクチャを参照することができる。このようなあるシステムを実現するために必要なシステムを、有効にするシステム(enabling system)と言う。対象とするシステムをテスト、あるいは分析するために必要となるMIL(mode-in-the-loop)、SIL(simulation-in-the-loop)、およびHIL(hardware-in-the-loop)シミュレーションまたはテストには、これを実現するための有効にするシステムが必要となる。

Figure 1にエンジンシステムの開発プロセスの全体を表す2元V字モデルを示す。Figure 1は、開発対象とする製品の分解と統合を表す垂直方向の「アーキテクチャV」と、システム、サブシステム、コンポーネントのそれぞれの開発プロセスである、要求分析、アーキテクチャ定義、設計仕様の決定、製作、検証(Verification)、妥当性確認(Validation)を表す水平方向の「エンティティV」(Figure 2)とを同時に表す2元V字モデルである^[5]。

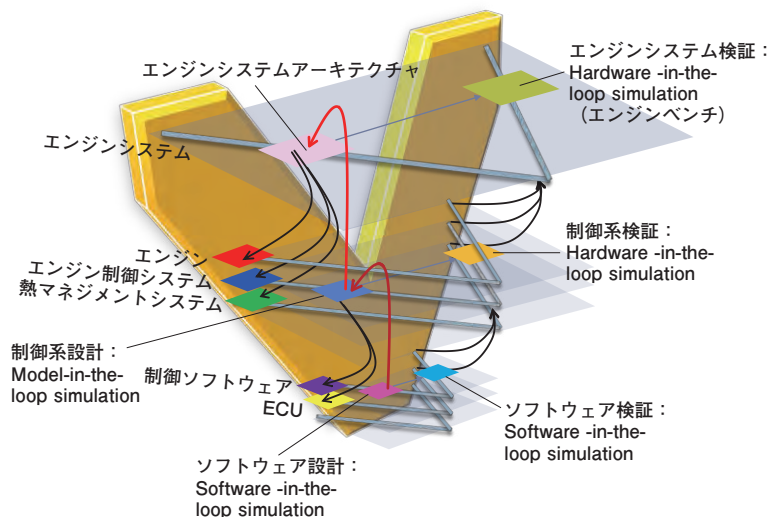


Figure 1 Dual Vee model of development process for an engine system

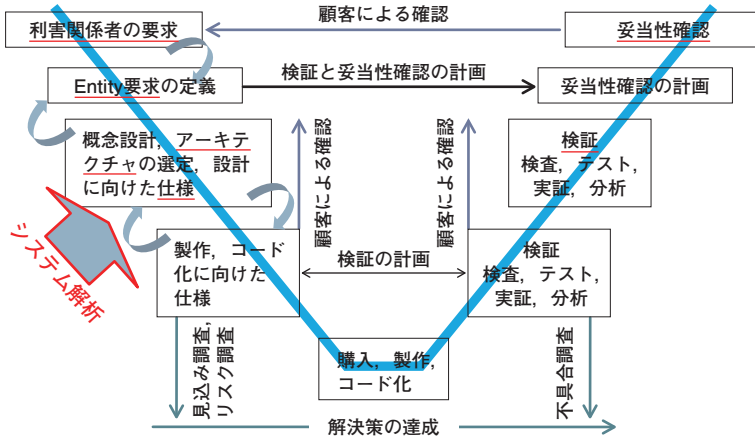


Figure 2 Entity Vee in horizontal direction of Dual Vee

Figure 2のエンティティVでは、利害関係者要求から始まり、システム要求の定義、アーキテクチャの定義、設計定義へと詳細化が進む。その際、繰り返しこれらの定義の関係性が正しいことを検証して進めることが重要であり、これらのアクティビティの結果としてシステムを構成する実装可能なサブシステムを定義することができる。そして、要求に従ってつくられて検証されたサブシステムを統合しシステムとしての検証および妥当性確認を行う。サブシステムとコンポーネント間の関係性も同様となる。なお、検証および妥当性確認の計画は、あらかじめFigure 2の左側のプロセスで行っておく必要がある。

アーキテクチャに基づく有効にするシステムの定義

対象とするシステムのアーキテクチャを定義するには、抽出された利害関係者の関心事を捉えたアーキテクチャビューポイントを持ち、それが決定するアーキテクチャ

ビューを持ったアーキテクチャ記述が必要となる。システムアーキテクチャは、ある環境中で、システム要素とその関係性から具体化されたシステムの基本概念または特性であり、システムを設計し、進化させる際に原則となるものである^[6]。したがって、定義されたアーキテクチャは、その後の設計以降のプロセスに対して制約を課すこととなる。また、アーキテクチャビューに応じてモデルを用いてアーキテクチャを記述することになる。アーキテクチャはシステムが用いられる環境についても限定していることに注意されたい。

事例として、エンジンシステムのアーキテクチャをコンテキストレベルで記述したアクティビティ図をFigure 3に示す。ここでは、SysML (Systems Modeling Language)^[7]を用いて記述している。このダイアグラムはある環境中でのエンジンシステムのコンテキストを表す。ドライバの指令に応じてエンジンシステムが生成したトルクが、トランスミッションを介してドライブトレインに伝わり、さらに道路へトルクを伝えていることを示している。自動車が走行するために必要な仕組みの基本機能を記述するダイアグラムであるが、空気を提供する大気とタイヤと接する路面も定義しており、これらは自動車が走行する上で必要な環境となる。

Figure 3をもとにエンジンシステムをテストするための有効にするシステムを考えた上で記述した結果をFigure 4に示す。すでにこれはエンジンテストベンチとして知られるものであるが、Figure 3に示すダイアグラムを含めたエンジンのシステムモデルを記述することから、エンジンシ

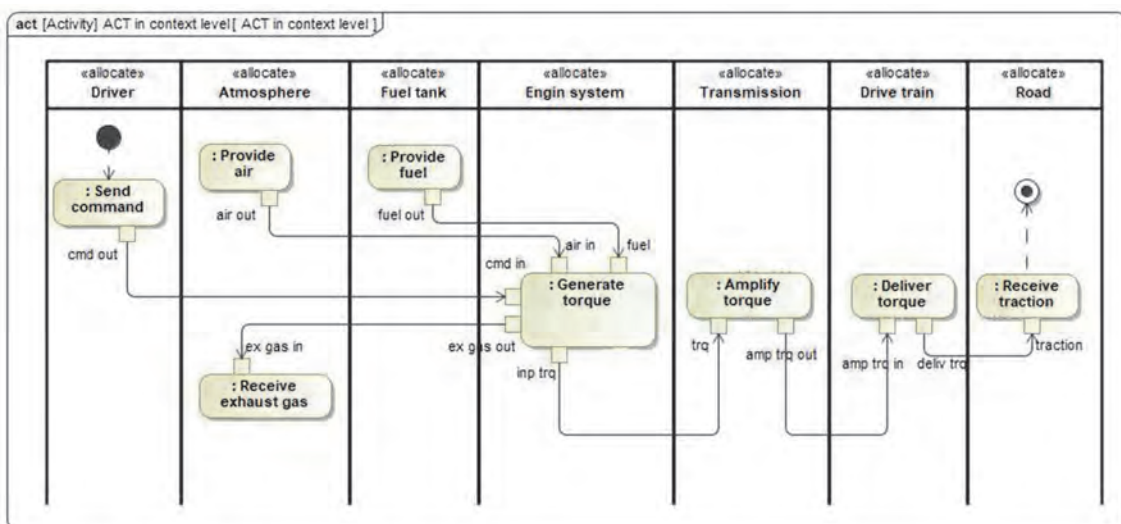


Figure 3 Activity diagram describing the context-level behavior of an engine system

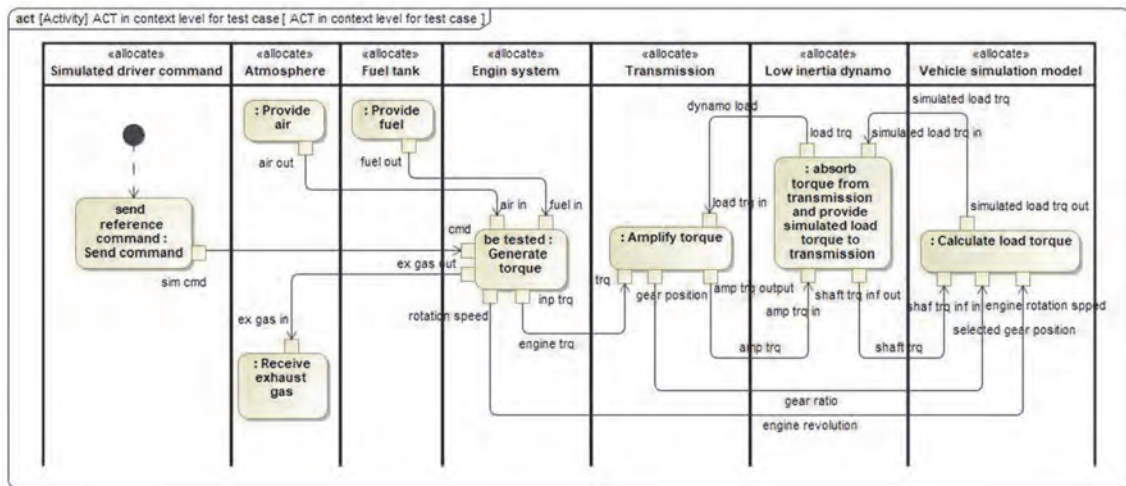


Figure 4 Activity diagram describing the behavior of the engine system and its test system

テムをテストするために、どのような状況で何をはかる必要があるかを規定することで、エンジンテストのためのシステムを規定できる。Figure 4にはエンジンテストを実施するためのシステム構成として、模擬したドライバ指令 (Simulated driver command)、車両シミュレーションモデル (Vehicle simulation model)、低慣性ダイナモ (Low inertia dynamo) が示されている。また、燃料タンク (Fuel tank) および大気 (Atmosphere) では環境性能の評価に「はかる」が関与する。

「はかる」と「つなぐ」: 検証と妥当性確認

エンジンシステムの検証と妥当性確認

エンジンシステムの仕様に対して検証を行う際には、車両がどのような環境に置かれ、どのような走行をドライバからの指令で実施する必要があるのか、いわゆるシステムコンテキストの理解の上での仕様の検証を行う必要がある。例えば、エンジンへ供給する空気の特徴が関与する可能性があり、またどのようなドライバの指令を模擬する必要があるのかが、関係する。さらに車両のシミュレーションモデルがどこまで精緻に、忠実度の高いモデルになっているのか、あるいはそうではないのかも十分に配慮される必要がある。特に、路面状況が異なる条件で検証が必要な場合には、車両が有するタイヤモデルの忠実度が大きな影響を与える可能性がある。

妥当性確認をとる必要がある場合には、開発対象のエンジンが何に対して妥当であることが求められているのかを明確にしておく必要がある。たとえば、ユーザーが「満タンでできるだけ長く走行できること」をニーズとして持っている場合に、そのユーザーニーズに合致したユーザー要求と運用シナリオを定義し、その運用シナリオ上でユーザー要求に対する妥当性を確認することとなる。システムの妥当性確認のプロセスでは、製品が利害関係者要求、ミッショ

ンの輪郭、運用シナリオを充足していることを実証することが求められる^[2,3]。

ユーザーニーズに合致したユーザー要求「ユーザーは自動車を満タンにしたあと、無給で少なくとも500 km離れた場所まで運転していけること」と、その運用シナリオを定義したものすると、走行経路に基づき大気と路面を定義し、模擬したドライバ指令を用意することが求められる。車両シミュレーションモデルの忠実度を高くする場合には、燃料タンク内の燃料の量に依存して車両重量を可変とする必要があるだろう。また、ドライバ指令についても、ユーザーの運転技量を反映するなど忠実度を増すことが求められることもある。これらの決定に際しては、MBSEのアプローチにより、定義されたシステム要求、アーキテクチャ、および設計に基づくこととなる。

自動運転システムのテスト

自動車事故およびそれに起因する死傷者を減らすこと、交通流を良くすることによる渋滞の緩和など、自動車に搭載される自動運転システム (Automated Driving System : ADS) に対する期待は大きい。SAE (Society of Automotive Engineers) で定義されたレベル3の自動運転では、自車両の制御や交通環境の監視といった動的運転タスク (Dynamic Driving Task) をADSが実施する。また、予め定められている運用設計領域 (Operational Design Domain) を自動運転車が逸脱した場合、運転権限がADSからドライバに移譲され、ドライバは適切に対処しなければならないとされる^[8]。

ISO/PAS 21148^[9]は、Safety of the intended functionality (SOTIF) に関する標準であり、わかっている安全 (known safe) / わかっていない安全 (unknown safe) / わかっている不安全 (known unsafe) / わかっていない不安全 (unknown unsafe) の4つのシナリオのカテゴリーを

定義し、この中の「わかっていない不安全」シナリオの領域をできるだけ減らすことの重要性を述べている。わかっていないが安全なシナリオであれば、そのままにしておいて良いが、不安全になってしまう、わかっていないシナリオが存在することは、極めて危険である。この「わかっていない不安全」シナリオの領域を減らすため、残余リスクを評価するための複数の方法で妥当性確認を行うこととしている。

運用シナリオを作る際にはそのシナリオに登場する人や物に漏れがあってはいけない。NHTSA (National Highway Traffic Safety Administration) では、これを定義するための枠組みが発行されており、そこでは自動運転にかかわる外部システムの分類が示されている^[10]。仕様書で規定された範囲(パラメータの限定を含む)での検証を十分に実施したことを前提として、運用シナリオをもとに行う妥当性確認では、利害関係者ニーズから考えることにより、生じてしまう可能性のある事象を発生させる必要がある。

たとえば、利害関係者ニーズとして、「早く目的地に到着したい」があった場合に、実際にシステムを利用するユーザーは、このニーズをもとにシステムを利用することが考えられる。その結果、交差点の左折時に、ユーザーが公道ではない道路を通過することを求める場合がある。このようなユーザーのニーズに対して対応することを許容するか否かを、担当エンジニアは設計時に考慮していない可能性がある。システムに対する適切な妥当性確認ができる運用シナリオを用意しておくことで、このケースでの残余リスクを評価できることとなる。このためには、テストシステムに、シナリオに登場する様々な人、物を「つなぐ」ことが求められる。

まとめ

製品やサービスを有効にするテストシステムに必要となる「はかる」、「つなぐ」を、モデルベースシステムズエンジニアリングの観点から論じた。開発対象のシステムを検証し妥当性確認をとる際に、どのような環境で何を「はかる」ことが要求されているのかを定義しておくことが重要であること、運用シナリオに基づき妥当性確認を行うには、利害関係者ニーズを反映した運用シナリオを定義し、テストシステムの中で様々な人、物を「つなぐ」必要が生じる。これらの一連の検証と妥当性確認を実現するには、システム設計定義のもととなるアーキテクチャの定義がキーポイントとなる。開発対象であるシステムのアーキテクチャをモデルで記述することで、比較的容易にテストシステムの構築に結びつけることができる。

今後は、開発のステージのみで検証と妥当性確認が行われるのにとどまらなると考えられる。開発ステージでは繋

がっていなかったものが運用中に繋がってきたときに、運用中のシステムを改修するなどして、テストをする必要性が生じる可能性がある。すでにソフトウェア分野では、DevOpsが行われていると言われる。そのテストをどのように実施するのか? 「はかる」、「つなぐ」は今後、必要不可欠なものとなる。

参考文献

- [1] Jana Sochor, Hans Arby, I. C. MariAnne Karlsson, Steven Sarasini, A topological approach to Mobility as a Service: A proposed tool for understanding requirements and effects, and for aiding the integration of societal goals, Research in Transportation Business & Management, 27, 3-14, 2018
- [2] INCOSE Systems Engineering Handbook 4th Edition, WILEY, 2015
- [3] システムズエンジニアリングハンドブック第4版, 監訳: 西村秀和, 慶應義塾大学出版会, 2019([2]の翻訳書)
- [4] Michael E. Porter, James E. Heppelmann, How Smart, Connected Products are Transforming Companies, Harvard Business Review, Oct. 2015
- [5] Kevin Forsberg, Hal Mooz, Howard Cotterman, Visualizing Project Management, Third Edition, John Wiley & Sons, Inc.
- [6] INTERNATIONAL STANDARD ISO/IEC/ IEEE 42010, First edition, 2011-12-01
- [7] システムズモデリング言語 SysML (A Practical Guide to SysMLの翻訳書), 監訳: 西村秀和, 東京電機大学出版局, 2012
- [8] SAE International: Taxonomy and Definitions for Terms Related to Driving Automation Systems for On-Road Motor Vehicles J3016_201806(2018)
- [9] PUBLICLY AVAILABLE SPECIFICATION ISO/PAS 21448, First edition, 2019-01
- [10] A Framework for Automated Driving System Testable Case and Scenario, NHTSA, Sept. 2018

潮目を迎えたエネルギー技術

Trends Changes in Energy Technology

辰巳 国昭

Kuniaki TATSUMI

独立行政法人産業技術総合研究所
イノベーション推進本部
首席イノベーションコーディネータ 博士 (工学)
Director
Technology Marketing Office, Research and Innovation Promotion Headquarters
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)
Ph. D.



日本の全エネルギー消費は、2000年頃をピークとして漸減傾向にあるが、大規模集約系の多い製造業での減少幅に較べ、分散系である民生部門や運輸部門での減少幅が少なく、分散系需要の比率が高まっている。一方、CO₂排出量はエネルギー消費の減少ほど下がっておらず、再生可能エネルギーの比率を高めることが求められる。2012年の再生可能エネルギー全量固定価格買取制度により、太陽光発電の増加率は高まっており、再生可能エネルギーの増大に合わせて必要性の増す電力貯蔵技術やPower-to-Gasなどの蓄エネルギー技術を概観する。

Total energy consumption in Japan has gradually decreased since 2000; compared to the decrease of energy consumption in the manufacturing industry sector, the decrease in the consumer and transport sector is small. On the other hand, total CO₂ emission has not been as small as the energy consumption decline. It is, thus, important to increase the proportion of renewable energy, such as solar photovoltaic (PV) and wind power. In 2012, Feed-in Tariff (FIT) policy for renewable energy was enacted in Japan, and then increase rate of the cumulative capacity of solar PV has been remarkably high. Energy storage technologies for renewable energy will be reviewed.

日本におけるエネルギー需要

18世紀の産業革命以後、世界のエネルギー消費は増大し、さらに第2次世界大戦以後の石油利用の拡大にともない、エネルギー消費の増大率はさらに高まった。日本においても、1950年代に始まる高度成長期に、特に、産業部門のうち製造業においてエネルギー消費は急拡大し、1973年の第1次オイルショックまで年率10%以上の伸びを示していた (Figure 1)。

しかし、製造業の分野においては、その後の二度のオイルショックや世界的な分業の進展など日本国内の産業構造転換にともなうエネルギー消費の変化などにより、最終エネルギー消費は第1次オイルショック直前の水準を上限として、それを大きく越えることはなかった。さらに2000年以降は、経済動向の影響、資源・環境の持続性の観点からのエネルギー利用合理化などから、製造業分野の最終エネルギー消費は減少傾向となっており、2011年以後は年間6 EJを切る範囲で推移している。

非製造業分野は、製造業ほどの大きな変動はないものの、1990年代中頃をピークにエネルギー消費は漸減している。この傾向は、民生部門のうちの業務分野、運輸部門においても同様で、ピークが2000年代前半にあるものの、ここ10年は漸減している。

一方、民生家庭部門は2000年頃まで増加を続け、その後、ほぼ横ばいを続けている。この部門は分散系であり、またエネルギー消費の1日の中での時間帯や天候の影響、季節による変動が大きい。

さらに、分散系としては民生家庭部門に加え、上述の運輸部門や民生業務部門が含まれる。集約系である産業・製造部門が1970年頃には最終エネルギー消費全体の6割に達していたが、1990年代以降は、分散系部門のエネルギー消費比率が5割を越えており、エネルギー利用の各種課題の解決を考える上では、分散系にも適用可能な方法の検討も重要となってきている。

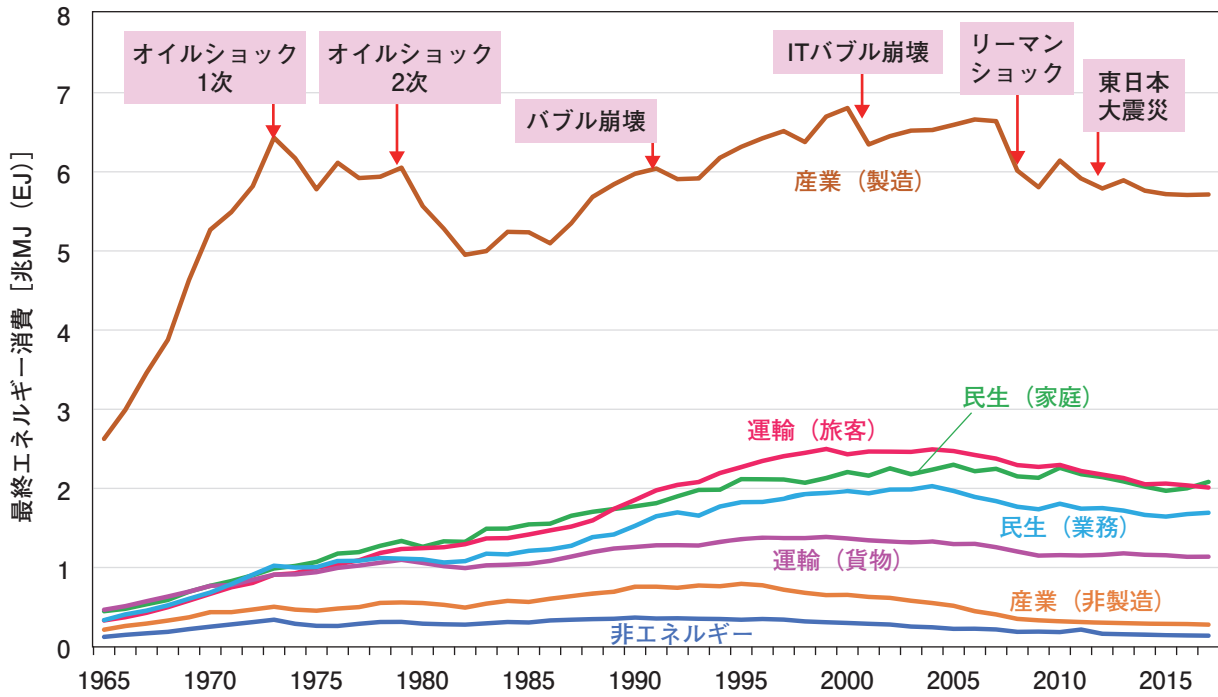


Figure 1 Total energy consumption by sectors in Japan^[1]

日本における部門別CO₂排出量

前節で概観したとおり、1990年以降、部門によってピークの時期に違い(1990年代中頃から2000年代前半)があるものの、最終エネルギー消費は減少傾向にあった。ところが、CO₂排出量は最終エネルギー消費ほど低減していないのが現状である (Figure 2)。この間、1997年にCOP3で採択され

た京都議定書において、日本は温室効果ガス排出量を2008～2012年に1990年度比6%減じる目標を掲げていたが、リーマンショックの翌年2009年に1990年とほぼ同量のCO₂排出量(1990年比+0.09%)にまで近づいたものの、1990年実績を未だに下回ることはいままでである。

そもそも、部門別に見てもCO₂排出量はどの部門において

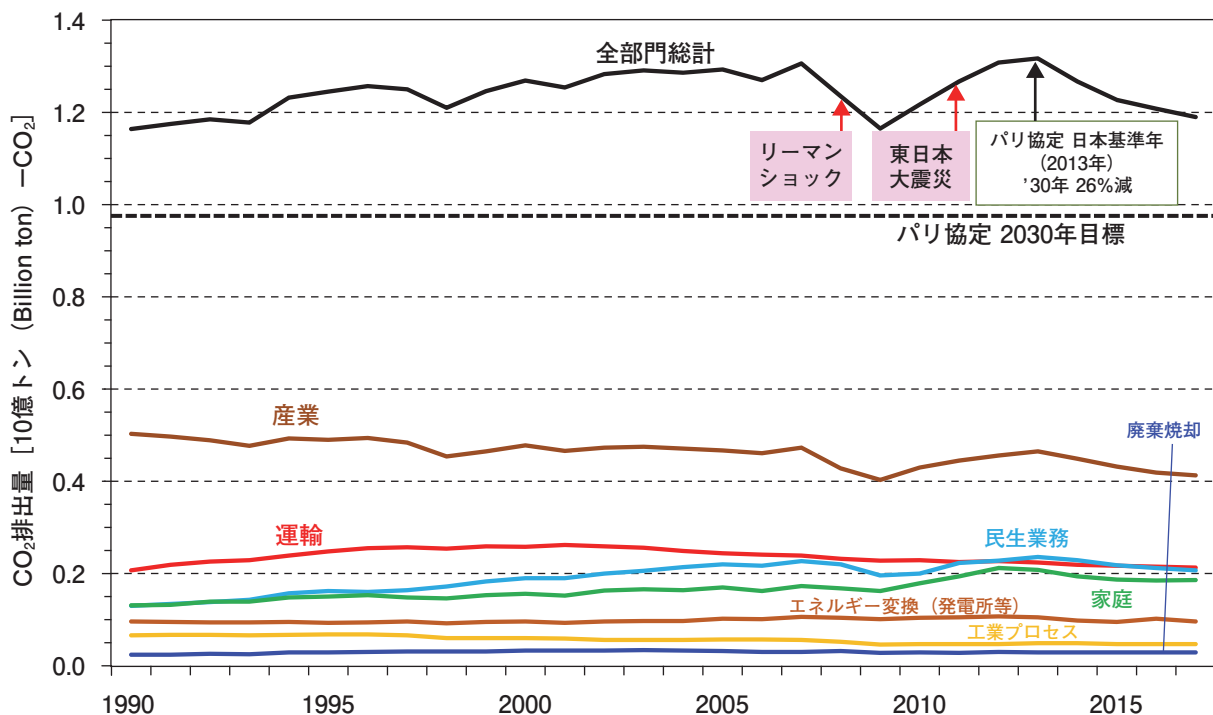


Figure 2 Trend of CO₂ emission in Japan^[2]

もエネルギー消費の減少ほどには減っていない。産業部門、民生業務部門において、リーマンショックによる経済活動の低減に関連すると考えられるCO₂排出量の低減が見られるが、経済活動の回復、そして後述する東日本大震災による一次エネルギー供給ポートフォリオの再構築により、CO₂排出量が一時的とはいえ戻ってしまっている。

それでも、産業部門は1990年比で見ると減少傾向にあるといえる。しかし、民生業務部門と家庭部門は、同期間で見ると増加しており、最近ではそれぞれ産業部門のほぼ半分の排出量を占めるに至っている。しかも、2013年をピークに漸減しているものの低減量は大きくない。

一方、運輸部門では、2000年頃をピークにCO₂排出量が漸減しているものの、他部門で見られる経済動向や一次エネルギーポートフォリオの変化に関連するCO₂排出量の変動はほぼ見られない。日本の2017年度のCO₂排出の17.9%を占める運輸部門のうち86%が乗用車や貨物車など、現状、主に石油を燃料とする車両部門からの排出となっている^[3]。2018年3月末時点での登録自動車数81,563,101台のうち、低CO₂排出車となるハイブリッド車で7,539,094台(8.1%)、電気自動車においては93,145台(0.1%)^[5]と、まだ大きな割合となっておらず、更なる普及が期待される。

なお、2015年にCOP21にて新たに採択されたパリ協定で、日本は2030年までに温室効果ガス排出量を2013年比26%減とする目標を新たに掲げた。この目標に対しては、全部門において2017年比で見ても年間2億トン-CO₂の排出削

減をする必要がある。この実現には、当然、産業部門だけでなく、民生業務部門、家庭部門そして運輸部門に対しても有効なCO₂排出削減誘導策を図っていく必要がある。

日本における一次エネルギー供給の動向に見える潮目

CO₂排出量を考える上では、一次エネルギー供給の動向を見る必要がある。Figure 3に1990年以降の日本の一次エネルギー供給の動向を示す。

化石燃料

石油、石炭、天然ガスに関しては、最大の一次エネルギー源である石油が1995年頃から減少傾向にある一方、石炭と天然ガスについては増加傾向にある。特に、後述する原子力エネルギーが東日本大震災以後に急激に減少する中で、天然ガス、そして石炭の火力発電の増加で電力供給を主にカバーしてきたため、日本でのCO₂排出量が一時的に増大することになった。総発熱量当りのCO₂排出量は分子中の主に水素と炭素の比率に依存し、石炭：石油：天然ガスでおよそ1.26：1：0.74であり^[5]、石炭も増えていることは石炭利用時のエネルギー変換効率を高めたり、CO₂回収・貯留(Carbon dioxide Capture & Storage；CCS)などの対策を併せていくことが求められると考えられる。

原子力エネルギー

CO₂排出抑制効果の極めて大きい原子力エネルギーについては、1990年代後半から2000年代にかけて日本の全一次エ

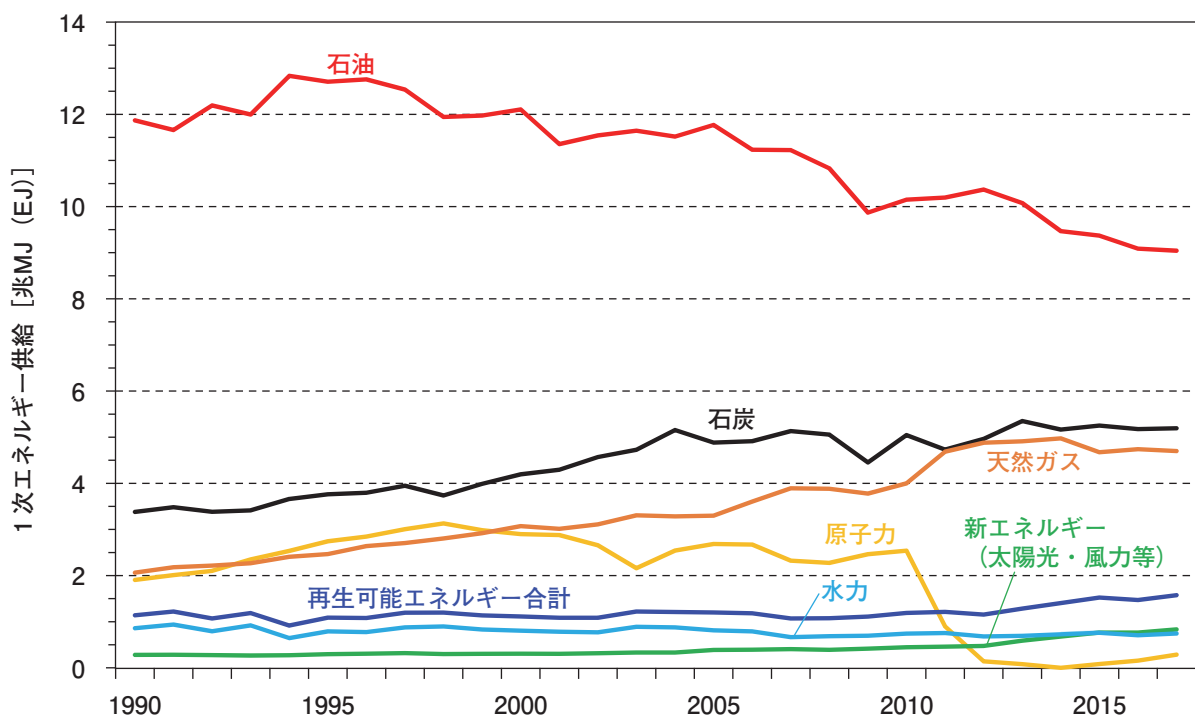


Figure 3 Trend of primary energy supply in Japan^[1]

エネルギー供給の10~14%を占めるまでに高まっていた。しかし、2011年3月の東日本大震災での福島第一原子力発電所事故およびその後の原子力発電所の安全性確保規制の見直しなどによって、一次エネルギー供給源として一翼を担うレベルに回復するには厳しい状況が続いている。

再生可能エネルギー（新エネルギー）

一方、旧来より再生可能エネルギーの代表である水力は年間0.64~0.94 EJで推移し、全一次エネルギー供給の3~5%を占めてきた。さらに2010年以降は再生可能エネルギーである太陽光発電や風力発電などの新エネルギーが水力エネルギーと肩を並べるところまで増大してきている。水力と新エネルギーを合わせた再生可能エネルギー合計としては、2017年には全一次エネルギー供給の7.6%を占めるところまで伸びてきた。

新エネルギーの導入量としては（Figure 4）、廃棄物発電に加え、2000年以降、風力発電と太陽光発電が増えている。太陽光発電による余剰電力買取（2009年）や再生可能エネルギー全量固定価格買取（2012年）が始まって以降、特に、太陽光発電は顕著な伸びを示しており、新エネルギーが水力を越える水準にまで導入が増えた要因となっている。太陽光発電による電力の固定買取価格は年々低減しているが、太陽光発電システム設置に掛かるコストも世界的に低減しており、太陽光発電の導入に対するコスト障壁も下がってきている。

この太陽光システム設置コストの低減は、世界的な導入量、

特に中国での導入量が増えていることにも起因している。2018年には、日本では6.5 GWの新規導入があったが、中国では45.0 GW、インド10.8 GW、米国10.6 GWがあり、積算導入量も既に中国では日本（56 GW）の3倍以上（176.1 GW）となっている^[6]。

一方、風力発電については、日本では、風況と立地条件に適した地点が必ずしも多くないことから導入は太陽光発電ほど進んでいない。しかし、世界的には風力発電も、太陽光発電とほぼ同等の風力発電設備の導入が進んでいるのが現状であることは指摘しておきたい^[7]。

見えてきた一次エネルギー供給の潮目

このように、日本国内においても、2010年以降、固定価格買取制度の下ではあるが、発電システム導入コストの低減も相まって経済的に成り立つ形で再生可能エネルギーの導入量が確実に増え、全一次エネルギー供給の1割程度を担うところまで来ている。これは2000年初頭に、COP3での京都議定書への対応が議論されていた頃に比べ、再生可能エネルギー導入の環境が大きく改善していることにも拠ると考えられる。さらにCOP21のパリ協定のCO₂排出量削減目標は京都議定書よりも厳しく、その達成には、再生可能エネルギーの導入量の増加は欠かせないと言える。

再生可能エネルギーと蓄エネルギー技術

化石燃料は、火力発電での電気エネルギーへの変換以外に、利用サイト・ポイントで需要に応じて変換される分散系利

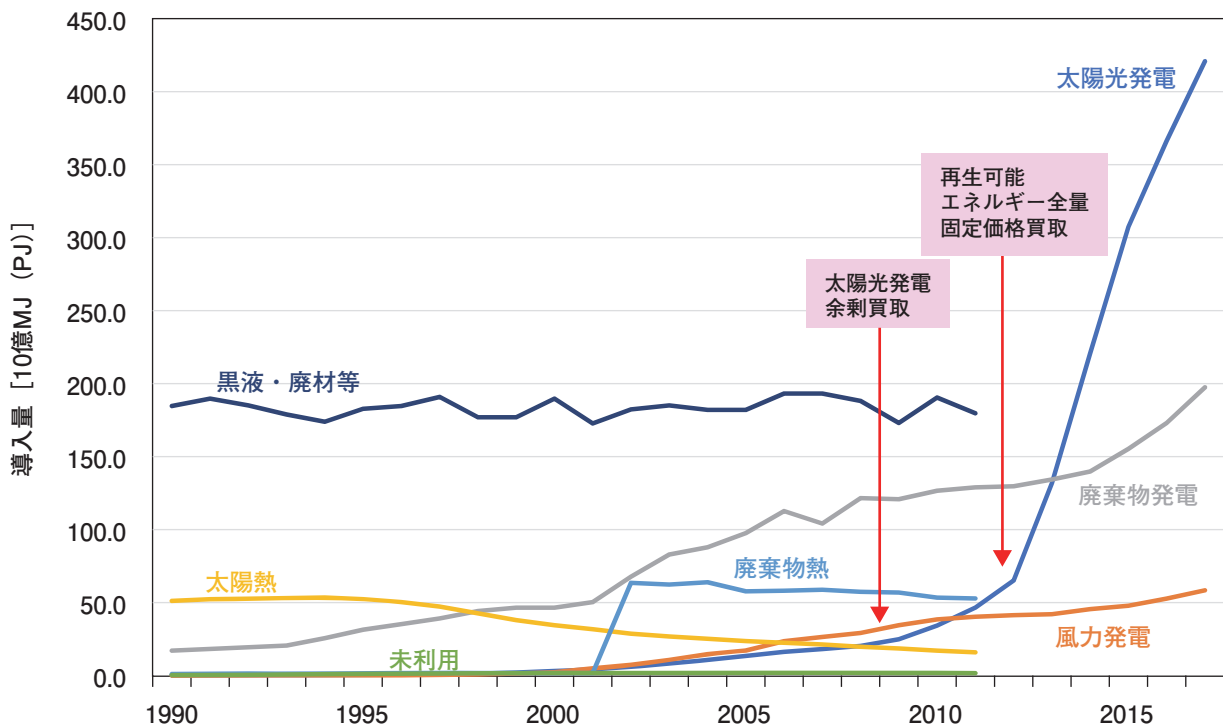


Figure 4 Cumulative installed capacity of each renewable energy (new energy) in Japan^[1]

用にも有効である。一方、水力発電や太陽光発電、風力発電は言うまでもなく電力として出力されることから、これを需要者に送るために電力系統線に繋ぐ。ところが、電力系統で接続された系の中では、電力の供給と需要が常に等しくなるようバランスさせなければ、交流の周波数が許容範囲を超えて変動したり、場合によっては大規模停電を引き起こしたりする怖れもある。水力発電は水量によって発電量を制御できるが、太陽光発電や風力発電は、需要とは連動しないだけでなく、そもそも発電量が変動する。そのため、この変動にともなう需要との差を電力系統内にある火力発電や水力発電などの出力制御が可能な発電電源で調整する必要がある。

そのため、電力系統内の出力調整能力や接続箇所での設備容量を超えて再生可能エネルギー発電を接続するためには、蓄エネルギー技術と組み合わせる必要がある。

蓄エネルギー技術

電力貯蔵技術

電力貯蔵技術としては、Table 1にあるとおり、幾つかの技術が実現若しくは検討されており、それぞれ得失を持つ。超電導技術以外は、電気エネルギー以外のエネルギーに変換されて貯蔵され、出力時に再度電気エネルギーに変換されるという往復で2度の変換が必要となるが、揚水発電においても70%の貯蔵効率(貯蔵した電力量のうち取り出せる電力量の比率)を持っており、この70%の貯蔵効率が電力貯蔵技術のベンチマークとなっている。

圧縮空気エネルギー貯蔵(Compressed Air Energy Storage; CAES)は、海外では空気貯留槽として岩塩層を用いる例が知られているが、日本ではタンクを用いたシステム実証がNEDOによって行われている。

また、蓄電池としては、電力貯蔵向けとして、ナトリウム硫黄電池(Na-S電池)やレドックスフロー電池、そしてリチウムイオン電池によるシステムが実証事業を含めて用いられている。特に、リチウムイオン電池は、電気自動車普及すれば、家庭などで電力系統に電気自動車が多数接続された状態で、電気自動車の蓄電池が電力貯蔵に用いられるのではないかとの検討(Vehicle-to-Grid)もされている。

Power-to-Gas (P2G)

もう一つの電力貯蔵として期待されている技術がPower-to-Gas (P2G)である。電力を燃料となり得る気体化学物質に変換し貯蔵する技術で、気体化学物質としては特に水素が有力候補である。電力で水を電気分解し水素として貯め、水素を燃料電池等で電力に変換するシステムが考えられている。

ただ、水の電気分解は一般に効率が高い(~90%)ものの、燃料電池は効率が高いと言われる固体酸化物形燃料電池でも60%程度であり、電力貯蔵効率としては70%には満たない。それでも、季節を越えるほどの長周期変動に対応する超大容量の電力貯蔵としては蓄電池では対応が難しく、P2Gでタンク容量を増やすシステムが注目されている。

おわりに

日本のエネルギー消費は、産業部門を中心とする大規模集約型から民生部門や運輸部門の分散型での需要の比率が高まっている。しかも、CO₂排出削減に向けて再生可能エネルギー導入量を高めること、すなわち電力比率が高まり、これを社会の中で使いこなす範囲を拡げる技術が求められる。

ただ、その実現には技術オリエンテッドの議論だけではなく、太陽光発電の普及で見たように、投資に対する経済

Table 1 Comparison of power storage technologies^[8, 9]

		揚水発電	圧縮空気 (CAES)	蓄電池	超伝導 (SMES)	フライホイール
貯蔵特性	規模	中~大	中	小~中	小~中	小
	容量(万kWh)	50~1,000	50~250	~80	~10	~1
	密度(kWh/m ³)	~1	8	100	10	50
	貯蔵効率(%)	70	70~80	70~80	80~90	~70
運転特性	起動・停止	1~数分	20~30分	瞬時	瞬時	瞬時
	負荷追従性	大	中	大	大	大
	信頼性	有	海外で有	有	確立中	一部で有
	寿命	40年以上	20年以上	5~17年	30年程度	20年程度
安全・立地	環境保全性	環境との調和			磁気対策	振動騒音対策
	安全性		空気漏れ対策必要	漏洩防止	クエンチ対策	回転以上対策
	立地	限定される	限定される	制約なし		制約少ない

合理性の観点でのシステム構築や普及施策も求められる。また、そのような新しいシステムの実現には、これまでにない標準化や評価・計測システムも必要であり、普及を考える上でその対応も重要となる。

参考文献

- [1] 経済産業省/EDMC「総合エネルギー統計」, EDMC推計
- [2] 全国地球温暖化防止活動推進センター (<https://www.jccca.org/>)
- [3] 温室効果ガスインベントリオフィス 日本の温室効果ガス排出量データ 2019年公開版(確報値: 1990~2017年度)
- [4] 一般財団法人自動車検査登録情報協会
- [5] 経済産業省資源エネルギー庁「総合エネルギー統計: エネルギー源別標準発熱量及び炭素排出係数(2018年8月30日改訂版)」
- [6] IEA Photovoltaic Power Systems Programme統計
- [7] IEA Wind Technology Collaboration Programme 2017 Annual Report
- [8] 電中研レビュー No. 17, 「複合エネルギー時代に向けて」, 表3-3-1(1987).
- [9] 内山 洋司, 「エネルギーの貯蔵・輸送」, p.12, エヌ・ティー・エス(2008)

計測指向情報処理技術と情報処理指向計測技術の共進化

Co-evolution of Measurement Oriented Information Processing Technology and Information Processing Oriented Measurement Technology

鷲尾 隆

Takashi WASHIO

大阪大学産業科学研究所第1研究部門（情報・量子科学系） 知能推論研究分野
教授 博士（工学）

Professor, Department of Reasoning for Intelligence, Division of Information and Quantum Sciences,
The Institute of Scientific and Industrial Research,
Osaka University
Doctor of Engineering



IoT社会の到来を受け、極端な条件下で複雑な過程から成る原理を用いる計測技術の必要性が増している。一方、急速な発展を見ている機械学習・統計的推定による情報処理は、不完全で複雑な大量情報から高精度・高信頼な推定を行うことに長けている。このような背景から、計測を指向した情報処理と情報処理を指向した計測技術の体系的な共進化により、IoT社会のニーズを満たす新たな先端的計測技術を実現する可能性が拓けつつある。本稿では、計測を指向した情報処理の研究分野「計測インフォマティクス」で明らかとなった研究論点を幾つか述べ、さらにその原理を情報処理指向の先端的計測デバイス・装置の開発に生かした成果を紹介する。

With the advent of the IoT society, there is an increasing need for measurement techniques that use the principle of complex processes under extreme conditions. On the other hand, rapidly developing information processing using machine learning and statistical estimation is good at making highly accurate and reliable estimation from incomplete and complex large amounts of information. From such a background, the systematic co-evolution of measurement-oriented information processing and information processing-oriented measurement technology is opening up the possibility of realizing new advanced measurement technology that meets the needs of the IoT society. This paper describes some of the research issues that have become clear in the field of measurement-oriented information processing “measurement informatics”, and further introduces the outcomes of utilizing that principle in the development of advanced information processing-oriented measurement devices and equipment.

はじめに

現実世界から必要な情報をデジタル化して収集する計測技術は、情報通信技術や情報処理技術と並んで、今後のIoT社会が必要とするコア技術である。そこでは、従来型センサによる計測技術に留まらず、全く新しい対象を測る計測技術やより高頻度、高精度、高分解能、高信頼、頑健でかつコンパクト、低コストなセンシングを可能とする計測技術など、いわゆる先端的計測技術が多く必要とされている。

このようなニーズの下で、現在、種々の先端的な計測デバイス・装置の研究開発が行われている。これらの多くは、極限の低濃度物質、極限の微小な分子や生体、極限の解像度の画像や物質分布、極限の遠距離物体、極限の高頻度・短時間、極限のコンパクト性など、様々な極限条件での計測・情報処理を目指すものが多く、極端な条件下で複雑な過程から成る計測原理や計算原理を用いる。さらに、測定

対象も、時間・空間の両領域で大きな揺らぎを含み、かつ非常に高次元な自由度を有する複雑なものであることが多い。そのため、得られる測定情報は、大量であるが多くのノイズを含みかつ計測対象に関する不完全な情報しか含まないことが多い。従って、不完全な大量情報からの対象推定や、複数測定情報の統合、事前知識による補完など、十分な計測結果を得るために高度な推定処理が必要とされる。

一方、並行して、高度な数理理論や統計理論、計算理論に基づく機械学習・統計的推定やそれらアルゴリズム原理・技術が急速な発展を見せている。これらは、上記のような不完全な大量情報や複数測定情報、事前知識から高い精度や信頼性を有する推定を行うことに長けている。このような背景から、機械学習・統計的推定・アルゴリズムと先端的な計測デバイス・装置を融合し、最初に述べたIoT社会のニーズを満たす新たな先端的計測技術を実現する可能性

が拓けつつある^[1]。

しかしながらこのような融合研究開発は、これまで個別問題について散発的に行われて来ているに過ぎず、先端計測を指向する機械学習・統計的推定・アルゴリズムの原理や、これら情報処理を前提とした高性能計測実現を指向した新しい計測技術について、体系的な研究はあまり行われて来なかった。IoT社会における計測への厳しい要求を満たすためには、計測を指向した情報処理と情報処理を指向した計測技術の体系的な共進化が求められる。

筆者等は情報処理研究の立場から、計測を指向する機械学習・統計的推定・アルゴリズム原理の研究分野「計測インフォマティクス」の開拓に取り組んでいる。そこでは、先端的な計測デバイス・装置の研究開発に取り組む多くの研究者、技術者と共同し、情報処理を指向した計測技術開発のお手伝いもさせていただいている。本稿では、計測インフォマティクス研究分野で明らかとなって来ている情報処理研究の論点を幾つか述べ、さらにその研究から生まれた原理を情報処理指向の先端的計測デバイス・装置の開発に生かした成果を紹介する。

計測インフォマティクスを巡る状況と研究論点

機械学習・統計的推定・アルゴリズムの原理に関する近年の急速な発展を受けた計測インフォマティクス研究は、まだその緒に就いたばかりである。海外においても、個別課題に関する散発的な研究開発が行われるに留まっており、組織立った体系的な研究活動はない。その原因の1つとして、機械学習・統計的推定・アルゴリズムを含む殆どの人工知能研究が、各種サービスや金融、自然科学、工学を含むあらゆる分野に広く適用可能な汎用性を追求していることが挙げられる。その幅広い適用性が人工知能の大きな社会的インパクトの源泉であり評価されるべきことではあるが、逆に計測など個別分野に固有の問題設定は顧みられず、基礎研究段階から分野の間尺に合わないことが起こっている。もう1つの原因は、世界的にデータサイエンティストが極度に不足する中で、高度な情報処理と先端的な計測装置・デバイスの両方に精通する研究者・技術者が少なく、またそのような人材が育つ環境も未熟なことである。

このようにまだ草創期ではあるものの、計測インフォマティクス研究への取り組みを通じて、情報処理技術を計測に適用する上で、基礎研究レベルから体系的に考えることが必要な幾つかの論点が明らかになって来ている。以下、我々が把握している3つの論点を説明するが、この分野の発展に伴いさらに様々な課題が発見されて行くと予想される。

論点1：分析のための推定と計測のための推定^[1]

機械学習や統計的推定は、与えられた個々のデータに見られる何等かの規則性を明らかにする理論や技術である。これらは自然法則や現実世界の常識は顧みずに、たとえ偏って集められたデータからであっても、データに見られる規則性を導出することを目的としている。この性質は、与えられたデータの範囲では優れた推定を可能にするが、そこから逸脱する問題設定については誤った結果を与えることがある。

たとえば、京都の街中で数十メートル離れたところに犬か狼とおぼしき動物の影を見たとしよう。洛中に狼がいる可能性は低いので、犬だと推定するのが妥当である。標準的な機械学習や統計的推定においても、京都の街中で数十メートル離れたところから犬か狼のような影を撮影したデータを多数集めて高精度に学習すれば、たとえ狼に良く似ている画像を見ても犬だと推定するアルゴリズムが出来上がる。なぜなら、学習用データの中に減多に狼の画像が存在しないので、犬と推定すればほぼ常に正解するというデータの性質を含めて学習するからである。すなわち、個別の画像に基づく計測結果のみではなく、それに狼が減多にいないというデータ全体が示す規則性を加味した分析結果が得られる。これは、長年の経験に裏打ちされた医師が、患者のレントゲン画像の性質に加えて医師が持つ知見を加味して診断結果を導くのに似ている。解きたい問題が、計測装置・デバイスから得られる結果に過去のデータに裏打ちされた経験を加味する分析であるならば、標準的な機械学習や統計的推定の技術を適用すれば良い。

一方で、洛中で収集したデータで学習した推定装置をそのままヒマラヤの森に持ち込むと、犬か狼とおぼしき動物の影のほとんどが狼であるにもかかわらず、相変わらず犬と推定し続けるという困った状況に陥る。計測においてはこれが問題となる。計測では、過去の経験による分析が役立つ状況でも、環境に依らずに常に正しい推定を出力することが求められる。このためには、学習データ全体の性質や規則性は用いずに、個々の画像の特徴のみに基づいて予断なく犬か狼か推定するアルゴリズムを用いる必要がある。既存の機械学習や統計的推定の技術によってこれを得るには、偏りの無いバランスが取れた犬と狼の画像数から成る学習データを用いるなどの工夫が必要となる。しかし、推定したい情報が犬と狼のような単純な選択ではなく複雑な画像やスペクトルであれば、未知のあらゆる可能な画像やスペクトルも含めた学習データを偏り無く準備するという、実行不可能な要求に迫られることになる。従って、多くの複雑な先端的計測のためには、計測を指向する新しい学習や推定原理の研究開発が求められることになる。

上述した分析のための推定と計測のための推定は、古くからそれぞれデータの分布に基づく「最大事後確率(MAP:

Maximum A posteriori Probability) 推定」とデータの分布を参照しない「最尤(ML: Maximum Likelihood) 推定」と呼ばれている。深層学習を含め、現在研究開発されている多くの機械学習や統計的推定の原理やアルゴリズムは前者を行うものであり、計測のためには基礎研究レベルから作り直しが必要となる場合が多い。計測を目的とした最尤推定に基づく機械学習や統計的推定に関する研究は、計測インフォマティクスの重要な論点である。

論点2：ベイズ推定^[2,3]

計測や分析においては、上述したデータの分布が示す規則性以外に、我々が予め知っている推定対象の性質を反映させた推定を行う方が望ましい場合がある。たとえば、計測したいたんぱく質の分布が細胞の一部に局在しており、計測画像全体に広がることはないことを予め知っていれば、その事前知識を推定に反映することで、画像全体に広がる観測ノイズの影響を低減しつつ、より妥当なたんぱく質分布推定を行うことが可能となる。このような事前知識を反映する推定をベイズ推定という。

その中でも特に、上記例のように対象が計測結果や分析結果の一部に局在するはずだという知識を反映した推定はスパース推定と呼ばれ、多くの機械学習や統計的推定で用いられている。これ以外にも、たとえば対象が滑らかに存在するはずだ、幾つかの塊になって存在するはずだというような事前知識を反映するベイズ推定手法が提案されている。

しかしながら、我々の多様な事前知識を何でも容易に推定に導入できるわけではない。事前知識を推定に反映するためには、知識を数学的に定式化する必要があり、さらにその数式の容易な計算を可能にするアルゴリズムを発見する必要がある。任意の事前知識の数式化やその効率的計算アルゴリズムが存在する保証はなく、もし存在したとしてもそれらを見つけるには数理やアルゴリズム分野の職人技が要求される。計測や分析によく用いられる我々の事前知識にはどのようなものがあるか、そしてそれらを如何に幅広く容易にベイズ推定に導入するかは、計測インフォマティクスの重要な論点である。

論点3：センサ配置^[4-6]

多くの先端的計測では、極端な条件下において複雑な過程から成る計測原理が用いられる。特に複数のセンシングデバイスを組み合わせて配置することで、所望の計測結果や分析結果を得る場合が多い。この際、幾つのセンサをどう配置すれば、計測結果や分析結果の精度、ロバスト性を最大化できるかという問題は、コストや装置形状などの資源制約下においては極めて重要である。

こうしたセンサ数とその配置問題の多くは、数理的には

劣モジュール関数の最大化問題として定式化可能であることが知られている。例えばある建物において、幾つの監視カメラをどこに配置すれば、より広く建物内の面積を監視するシステムを構築できるかという問題を考える。この場合の監視面積は、カメラを設置可能なすべての候補地点からどの場所を何か所選択して設置するかによって決まる。すなわち監視面積は、設置地点集合を入力とする関数であり、集合関数と呼ばれる。1個のカメラのみでは監視できる面積は限られ、カメラを追加して最適に配置すると監視面積は広がる。しかし、カメラを増やしすぎるとカバー範囲が重複して、あまり監視面積は増加しなくなる。すなわち、監視面積は設置するカメラ台数に対して次第に増加しなくなる、いわゆる収穫逡減の法則に従う。一般に、収穫逡減の法則に従う集合関数を劣モジュール関数という。監視面積のような劣モジュール関数の出力を最大にするセンサ設置地点集合を見つける問題を、劣モジュール関数最大化問題と呼ぶ。

監視エリアの広さに限らず多くの計測や分析問題において、精度やロバスト性など様々な性能指標が、劣モジュール関数であることが知られている。従ってこの分野において、劣モジュール関数最大化問題を解くことは重要である。しかしながら、最適なセンサ配置を決める上で、沢山の設置候補地点から監視面積を最大にする設置地点組み合わせ集合を選ぶには、膨大な組み合わせを試す必要がある。計算科学の分野では、厳密に劣モジュール関数を最大化する集合を探すことはNP困難問題という非常に計算の手間がかかる問題であることが知られており、実用的な速さで大規模な問題を高精度に解くアルゴリズムはまだ研究途上にある。このような実用的アルゴリズムの探求も、計測インフォマティクスの重要な論点である。

研究開発事例

ここでは、上述した計測インフォマティクスの中で、特に論点1の分析のための推定と計測のための推定を適用した先端的計測技術について、それぞれ情報処理研究者である筆者と計測技術研究者との共同研究事例を紹介する。

事例1：ナノポアによる極微粒子種別分析^[7-10]

この事例は、筆者が所属する大阪大学：産業科学研究所：産業科学ナノテクノロジーセンター：バイオナノテクノロジー研究分野において、ナノ計測技術研究に取り組む谷口正輝教授等との共同研究である。

ナノポアは、Figure 1に示すように電解質溶媒で満たされたナノからマイクロスケールのホールである。この上下に電極を配置して定電圧を印加すると、ナノポアを通じてイオン電流が流れる。そこに、電界や圧力などの作用によって上側から極微粒子を導き下側に向けてナノポアを通過さ

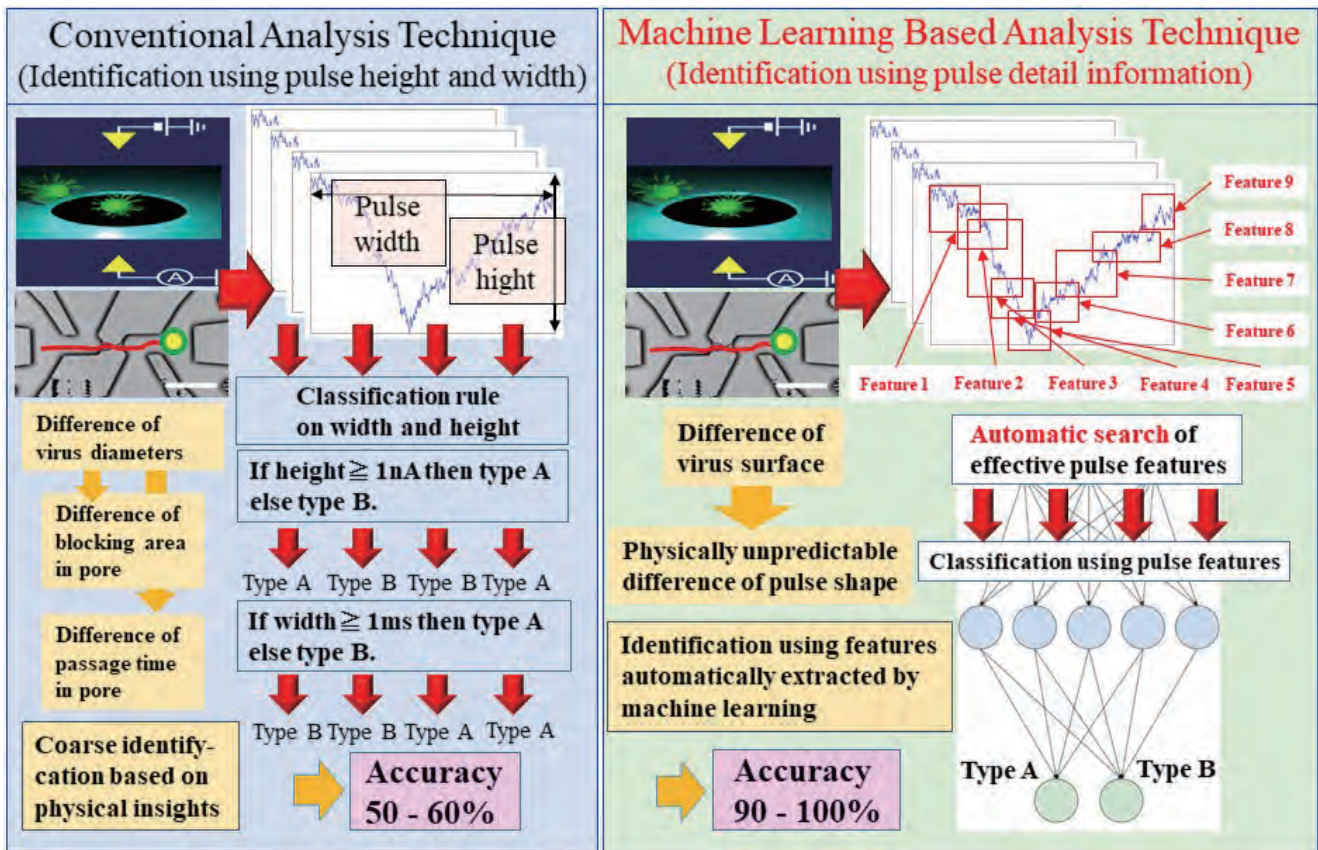


Figure 1 Difference between conventional nanopore pulse identification and nanopore identification using machine learning.

すると、通過時に粒子が穴を一時的に部分閉塞するためにイオン電流が下降し、減少電流パルスが得られる。このパルス形状には通過する極微粒子の大きさや通過速度のみならず、形状や表面状態など様々な情報が反映されている。そこで、ナノポアから出力されるパルス形状によって、個々に通過した極微粒子の種類や性質を分析できる。

従来のナノポア出力パルスによる極微粒子識別においては、Figure 1の左側に示すように各パルスの波高や波幅を基に識別を行っていた。粒子径が大きければナノポアの閉塞面積が大きいので、パルス波高は大きくなると想定される。粒子がナノポアを通過しやすい大きさや質量、表面状態を持てば通過速度が速いので、パルス幅は小さくなると想定される。従来はこのような物理的知見に基づき、パルスの波高や波幅の閾値判定によって、粒子種類を識別しようとした。しかし、同じ種類の粒子でも大きさや状態に個体差があり、必ずしも波高や波幅に種類の違いが明確に反映されるとは限らない。さらに計測される電流パルスにはノイズも多く載っている。そのため、かけ離れた大きさや性質の粒子同士を識別する場合を除いて、パルスの波高や波幅だけに頼っては十分な識別精度が得られないことが多かった。

そこで本共同研究ではFigure 1の右側に示すように、パルス波形の特徴を特徴量として指標化した。特徴量としては、従来の波高、波幅に加えて、短冊状に粗い時刻刻みでパル

ス波高を粗視化したもの、パルスの尖り具合や偏り具合を表す様々な指標、さらに機械学習技術によって自動生成した指標も用いた。識別対象とする極微粒子の種類毎にパルス波形を計測して特徴量化した学習用データを収集し、これに機械学習アルゴリズムを適用して、粒子種類を識別する分類器を得た。機械学習アルゴリズムには、対象とする粒子種類の識別に有効な特徴を自動選択するアルゴリズムを組み込み、粒子の個体差や計測ノイズにロバストな識別を行えるようにした。ここでは現実には各種の極微粒子が検体に現れる頻度に基づいて学習用データを準備したので、得られた分類器はパルス波形特徴のみならず各粒子種類の出現頻度も反映した識別を行う。すなわち、現実のデータの分布を考慮した分析による種類識別を行う。

この技術を大腸菌と枯草菌、表皮ブドウ球菌と黄色ブドウ球菌といった性質や形状が似通った細菌ペアの識別に適用したところ、従来技術では50~60%の識別精度しか得られないのに対し、90~100%の十分な識別精度を達成した。さらにA型、B型、A垂型の3タイプのインフルエンザウイルスの識別に適用したところ、従来技術では同じく50%以下の識別精度しか得られないのに対し、72%程度の識別精度を得た。個々のパルスでは十分な精度とは言えないが、別に複数回のパルス計測に基づいて識別するアルゴリズムを構築して検証したところ、99%以上の識別精度を達成した。

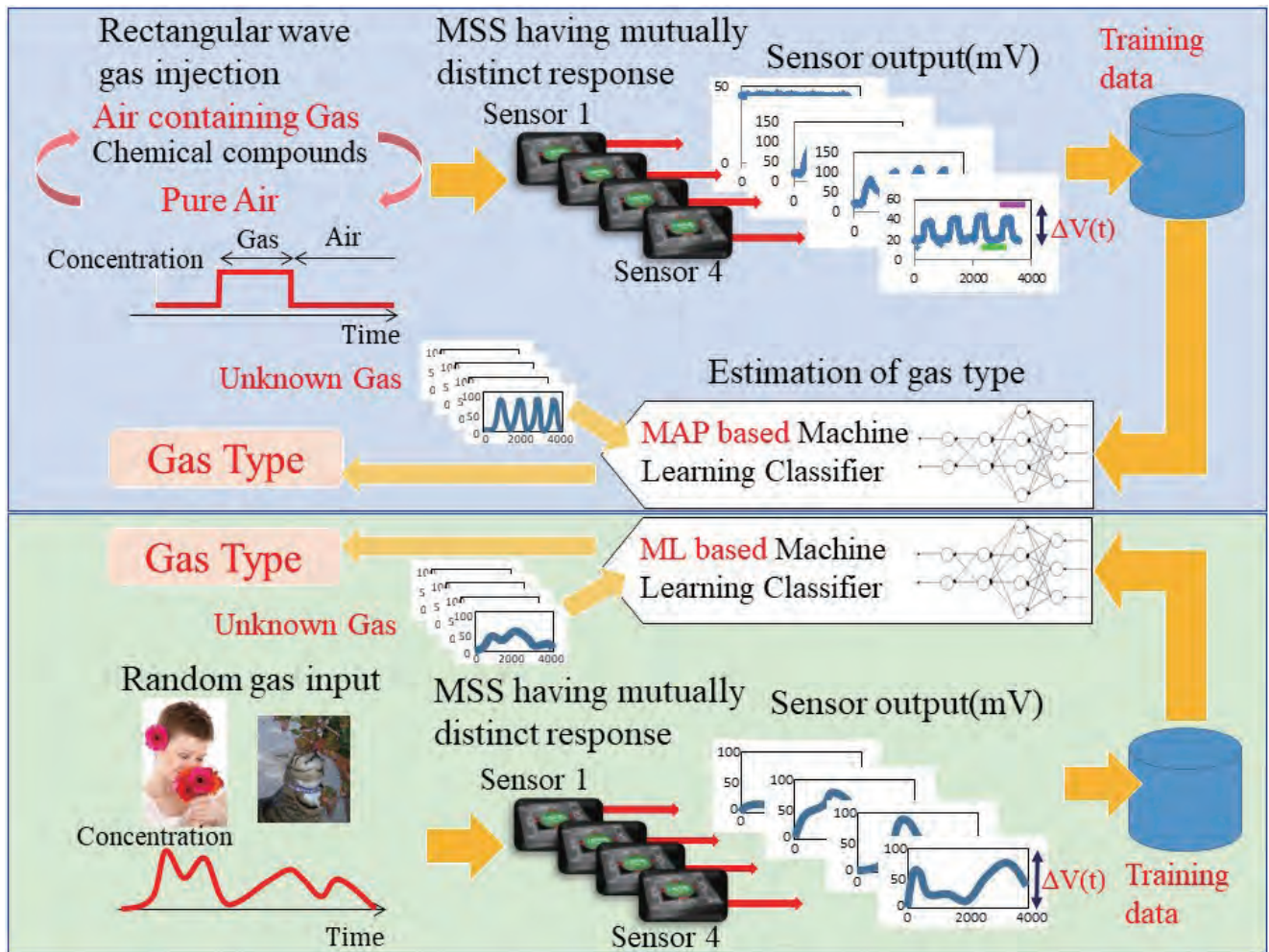


Figure 2 Difference between olfactory sensor by conventional machine learning and olfactory sensor by novel machine learning performing maximum likelihood estimation.

事例2：MSSセンサによる超口バスト嗅覚計測^[11, 12]

この事例は、国立研究開発法人物質・材料研究機構：国際ナノアーキテククス研究拠点：ナノシステム分野：ナノメカニカルセンシンググループにおいて、嗅覚センサ技術研究に取り組む吉川元起グループリーダー等との共同研究である。

MSS嗅覚センサは、Figure 2に示すように複数の異なるMSSセンサから成る。各センサは、空気中に含まれる微量のガス化合物分子の吸脱着により動的に伸縮する薄膜が生じる応力を、電圧に変換するデバイスである。従って、空気中で同一の濃度変化に従う同一ガス化合物分子に暴露されても、薄膜の性質が異なるセンサからは異なる電圧波形が出力される。MSS嗅覚センサは、異なる性質の薄膜を実装することで互いに異なる応答特性を持たせたMSSセンサで構成されており、これらの出力電圧波形の組み合わせパターンに基づいてニオイの元である空気中の微量のガス化合物分子を識別する。MSS嗅覚センサのセンサ部はMEMS技術により作られており、全体で数ミリ角程度にコンパクト化されている。

従来の嗅覚センサでは、Figure 2の上段に示すように入力

にマスフローコントローラやポンプを配し、入力される空気流量やその中のガス化合物分子濃度を矩形波状に制御してセンサ部に導入し、繰り返し矩形波入力に対する各センサ応答電圧波形を計測する。入力波形が完全に制御されているので、各センサの出力電圧波形はガス化合物分子に対する各薄膜の吸脱着の特性を表す。この組み合わせはガス化合物分子の種類毎に異なるので、予め収集したデータを用いて通常の機械学習アルゴリズムによって最大事後確率(MAP)推定を行う分類器を学習する。未知のガス化合物分子の計測電圧波形が与えられると、この分類器によってその種類を推定する。これは論点1で述べた分析のための推定を行う分類器であり、矩形波入力に対する電圧波形組み合わせ入力に対して最も高い精度を与えるように学習されている。京都市内のデータで訓練した分類器をヒマラヤの森に持って行くと役に立たないように、それ以外の波形入力条件に関しては、電圧波形やその組み合わせ分布が全く異なるので推定精度は著しく劣化する。そのため入力の流量制御を欠くことはできず、センサ部は数ミリ角程度のコンパクトなものであるにもかかわらず、装置全体としては大きくなってしまふ。

これに対して本共同研究ではFigure 2の下段に示すよう

に、新たに開発した最尤(ML)推定を行う分類器を得る機械学習アルゴリズムを開発した。詳細は省くが、MSS嗅覚センサから出力される電圧波形組み合わせから、入力波形に依存せずガス化合物分子の種類にのみ依存する特徴量を抽出する学習を行うことで、入力される空気流量やその中のガス化合物分子濃度の波形の影響を受けないでガス化合物分子の種類を推定する分類器を学習した。これは論点1で述べた計測のための推定を行う分類器であり、これによってマスフローコントローラやポンプによる入力の流量制御を不要とした。その結果、数ミリ角程度のMSS嗅覚センサ本体部のみでニオイ識別を行うセンサを開発した。

このMSS嗅覚センサを、エタノール、水、ヘプタン、エチルアセテートと言った単一のガス化合物を入れたビーカーの上部に手でかざして軽く振ったところ、99.6%の精度で種類を識別できた。また、ローズマリー、レッドチリペッパー、ガーリックといった芳香性の混合化合物を入れたビーカーについて同様な計測を行った結果、同じく89%の識別精度を得た。これに対して、MSS嗅覚センサ本体のみを用いて従来の機械学習で識別を試みたところ、実用に耐えない非常に低い精度しか得られなかった。このように、計測問題に適した機械学習アルゴリズムの開発によって、デバイスや装置の開発では達成できない超コンパクトで超ロバストな計測を実現することができた。

おわりに

IoT社会の進展に伴い、計測技術への要求はますます高度化し、それに伴って先端計測にはより高度な情報処理と計測デバイス・装置技術の融合が求められていくと思われる。そのためには、情報処理と計測デバイス・装置の基礎原理から、それぞれ計測と情報処理を前提とした体系的な研究開発が重要になる。本稿では、情報処理サイドから計測指向情報処理を体系的に研究することを目的とした計測インフォマティクスとその幾つか重要な論点を述べ、さらにその一部の成果を適用した先端計測技術研究開発の実例を紹介した。計測インフォマティクス研究の進展に伴い、今後様々な先端計測分野での成果が期待されると共に、さらなる研究論点が見いだされて行くと思われ。

筆者等は、世界的にも遅れている計測インフォマティクス研究の促進、研究者・技術者間の情報共有と人材育成を目指して、2018年度から(一社)人工知能学会の下に「計測インフォマティクス研究会」^[13]を設立し、年2回の研究会を開催している。人工知能学会非会員でも自由に参加・聴講可能なので、興味のある方の参加を期したい。

参考文献

- [1] T. Washio, G. Imamura and G. Yoshikawa. "Machine learning independent of population distributions for measurement". Proc. DSAA2017: 4th IEEE International Conference on Data Science and Advanced Analytics, Tokyo (2017), DOI: 10.1109/DSAA.2017.28.
- [2] Y. Nakanishi-Ohno, T. Obuchi, M. Okada and Y. Kabashima. "Sparse approximation based on a random overcomplete basis". J. Statistical Mechanics: Theory and Experiment(2016) 063302.
- [3] T. Obuchi, Y. Nakanishi-Ohno, M. Okada and Y. Kabashima. "Statistical mechanical analysis of sparse linear regression as a variable selection problem". J. Statistical Mechanics: Theory and Experiment(2018)103401, 1-41.
- [4] Y. Kawahara, K. Nagano, K. Tsuda and J. Bilmes. "Submodularity cuts and applications". Advances in Neural Information Processing Systems (2009)22, 916-924(Proc. NIPS2009).
- [5] Yoshinobu Kawahara and Takashi Washio. "Prismatic algorithm for discrete D.C. programming problem". Advances in Neural Information Processing Systems (2011) 24, 2106-2114(Proc. NIPS2011).
- [6] 河原吉伸, 永野清仁. "劣モジュラ最適化と機械学習". 機械学習プロフェッショナルシリーズ, 講談社サイエンティフィック (2015).
- [7] M. Tsutsui, Y. He, K. Yokota, A. Arima, S. Hongo, M. Taniguchi, T. Washio and T. Kawai. "Particle trajectory-dependent ionic current blockade in low-aspect-ratio pores". ACS Nano, American Chemical Society(2016)10[1], 803-809.
- [8] M. Tsutsui, T. Yoshida, K. Yokota, H. Yasaki, T. Yasui, A. Arima, W. Tonomura, K. Nagashima, T. Yanagida, N. Kaji, M. Taniguchi, T. Washio, Y. Baba and T. Kawai. "Discriminating single-bacterial shape using low-aspect-ratio pores". Scientific Reports(2017)7(1)17371.
- [9] M. Tsutsui, M. Tanaka, T. Marui, K. Yokota, T. Yoshida, A. Arima, W. Tonomura, M. Taniguchi, T. Washio, M. Okochi and T. Kawai. "Identification of individual bacterial cells through the intermolecular interactions with peptide-functionalized solid-state pores". Analytical Chemistry(2018) 90, 1511-1515.
- [10] A. Arima, M. Tsutsui, I. H. Harlisa, T. Yoshida, M. Tanaka, K. Yokota, W. Tonomura, M. Taniguchi, M. Okochi, T. Washio and T. Kawai. "Selective detections of single viruses using solid-state nanopores". Scientific Reports, (2018)8, 16305.
- [11] G. Imamura, G. Yoshikawa and T. Washio. "Development of machine learning models for gas identification based on transfer functions". Proc. 17th International Meeting on Chemical Sensors, Vienna(2018)AR1.1.
- [12] G. Imamura, K. Shiba, G. Yoshikawa and T. Washio. "Free-hand gas identification based on transfer function ratios without gas flow control". Scientific Reports(2019)9, 9768.
- [13] <http://www.ar.sanken.osaka-u.ac.jp/SIG-MEI/>

The Merging of Two Environmentally-Driven Paradigm Shifts in Energy

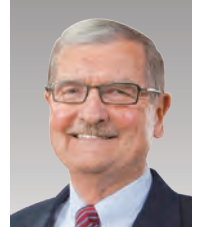
環境対策として進められているエネルギー分野のふたつのパラダイムシフトの統合について

Scott SAMUELSEN

スコット サミュエルソン

Professor
Mechanical, Aerospace, and Environmental Engineering
Director
Advanced Power and Energy Program
University of California Irvine (UCI)
Ph. D.

米国カリフォルニア大学 アーバイン校
機械航空宇宙工学部 教授
先進動力エネルギー計画 ディレクター
博士 (機械工学)



The environmental challenges of Climate Change and degraded Urban Air Quality are driving paradigm shifts in two major energy sectors, the generation of electricity (electric power) and the powering of vehicles (vehicle power). In the electric power sector, the paradigm shift is from fossil fuel to the sun as the source of energy. In the vehicle power sector, the paradigm shift is from fossil fuel to the sun as the source of energy. These parallel changes result in a zero emission of greenhouse gases to the atmosphere, and a zero emission of urban air quality degrading pollutants to the atmosphere. A major side effect is fuel independence, removing the reliance on internationally sourced fossil fuels and associated geo-politics and conflicts. Fortuitously, the paradigm shifts are resulting in a merging of the two sectors.

気候変動と都市の大気環境の悪化に対する環境対策が、電力エネルギー供給とクルマの動力というふたつの分野についてパラダイムシフトをもたらしつつある。電力供給分野では、エネルギー源が化石燃料から太陽光に移るというパラダイムシフトがある。クルマの動力の分野では、エネルギー源が化石燃料から太陽光に移るというパラダイムシフトがある。同時進行しているこれらの変化が大気中への温室効果ガスの排出をゼロにし、大気中への環境汚染物質の放出をゼロにするのである。この副次的効果として、エネルギー自給率が向上し、海外からの化石燃料調達に伴う地政学的対応や紛争への関与から解放されることになる点は重要である。これらのパラダイムシフトの結果、幸いにもふたつの分野が統合されつつある。

Introduction

The combustion of fossil fuels has served society for centuries as the driving force for economic growth and the quality of life. Whether generating electricity, propelling aircraft, powering automobiles, trucks, and buses, cooking, heating water, space heating, or drying clothes and dishes, combustion is the technology used to liberate and transform the energy bound in the fossil fuel to high-temperature gases in an engine or appliance burner to produce the useful product which we take for granted. Simply itemize the number of your activities in one day that are rooted in combustion. The hot shower, the egg omelet, the commute to work, the call on the cell phone, the news on the television, the Internet, your computer, the light in the room, the air conditioning in your office, the food on your table.

As remarkable combustion has been in serving society, certain ramifications are causing a shift to alternatives.

One ramification is the dependence of combustion on fossil fuels. A second ramification is the emission of contaminants (CO₂, CH₄, N₂O as examples) that drive climate change. A third is the emission of criteria pollutants (CO, NO_x, HC, as examples) that degrade urban air quality^{*1}.

*1: Climate Change Gases: CO₂ (carbon dioxide), CH₄ (methane), N₂O (nitrous oxide) as examples.

Criteria Pollutants: CO (carbon monoxide), NO_x (oxides of nitrogen), HC (partially oxidized hydrocarbons) as examples

These ramification are leading to changes across the energy spectrum, especially the two sectors (electric power and vehicle power) that collectively have the largest energy demand and collective CO₂ emission worldwide. As a result of the growing evidence of the environmental and resource impacts over the past six decades, both sectors are experiencing paradigm shifts from a classic “combustion-dominant construct” to a “renewable-

dominant construct” with the goal to mitigate climate change and provide a quality of air for future generations.

Vehicle Power

Conventional combustion vehicle drivetrains and exhaust emissions are illustrated in Figure 1. The classic combustion vehicle (Figure 1a) has a mechanical drive train and emissions of both major products of combustion (CO₂, H₂O, N₂) and criteria pollutants.² The efficiency of the classic combustion vehicle (CCV) is 16% and processes 2,000 pounds of air and removes 400 pounds of oxygen from the atmosphere per tankful (20 gallons) of gasoline.

*2: H₂O: Water
N₂: Nitrogen

The introduction of the Prius by Toyota in 1997 was the first major step in the paradigm shift of vehicle power (Figure 1b). In the hybrid combustion vehicle (HCV), the drive train is transitioned from mechanical to electric, and a large battery (along with power electronics and an electric motor) are added to the mix. The net result is a doubling of the efficiency, the reduction by 50% of the amount of oxygen consumed per tankful of gasoline, and a proportional decrease in the emission of CO₂ and criteria pollutants.

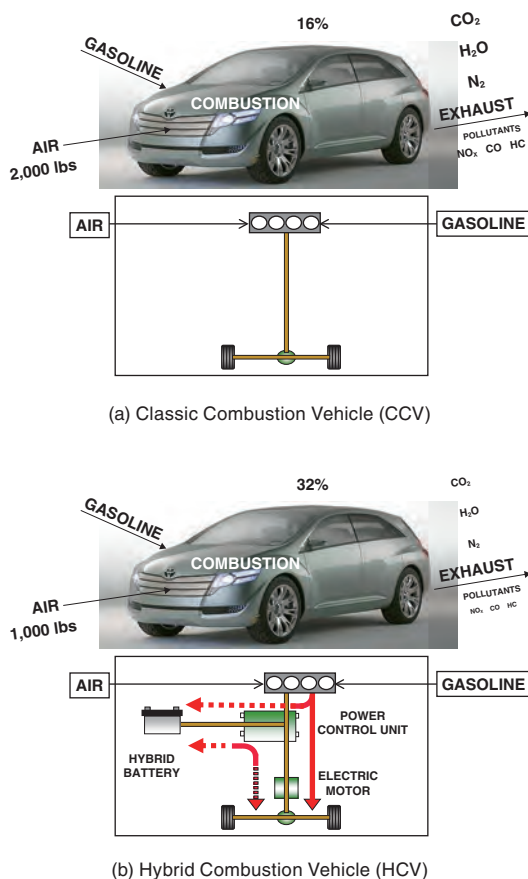


Figure 1 Conventional Combustion Vehicles

In Figure 2, the next-generation of zero-emission vehicles are illustrated. The fuel cell electric vehicle (FCEV) utilizes the hybrid electric drive train platform with two notable changes (Figure 2a). The combustion engine is replaced by a fuel cell engine, and the fuel is changed from gasoline to hydrogen, both in their own right paradigm shifts. The efficiency again doubles, the amount of oxygen consumed is reduced by 50%, and neither greenhouse gases (GHGs) or criteria pollutants are emitted. The FCEV is virtually the replacement to the CCV and HEV, providing the accustomed range (300 to 400 miles), fueling time (under 5 minutes), and an engine block (fuel cell engine) that can scale to power the largest vehicles (e.g., class 8 heavy-duty long-haul trucks, locomotives, ships).

For short range use and applications where the time to charge is not an issue, the battery electric vehicle (BEV) provides the convenience of fueling at home (Figure 2b), at a hub for a fleet of autonomous vehicles, or at a hub for medium duty vehicles such as buses and delivery trucks.

Combining the features of the FCEV with the BEV results in a compelling product for both customer satisfaction and efficiency (Figure 2c). The plug-in fuel cell electric vehicle (PFCEV) has the advantage of charging at home with an all battery electric range (BER) of 40 miles or more, and an overall range of 300 to 400 miles when desired.^[1] (Notable, in most urban areas, over 80% of trips are 40 miles or less.)

The introduction of alternative fuels requires infrastructure for the charging of plug-in vehicles and dispensing of hydrogen for fuel cell vehicles. The principal strategy for PEVs is home charging with both work places and commercial centers deploying chargers for convenience and to mitigate range anxiety.

The hydrogen fueling infrastructure is being deployed at existing gasoline stations. The initial deployment in California, for example, followed a plan established by the University of California Irvine (UCI) Advanced Power and Energy Program under contract to the California Energy Commission (Figure 3a).^[2, 3] Twenty-two stations were identified in two northern California focus areas (the San Francisco Peninsula, and the East Bay) and forty stations in three southern California focus areas (Irvine/Newport Beach, Torrance, and Santa Monica). In addition, a few “weekend destination” locations were proposed (e.g., Santa Barbara, San Diego, and Lake Tahoe) as well as a “connector” station at Harris Ranch between southern and northern California. In total, 68 stations were identified as the minimum to enable the early market for FCEVs. Shown in Figure 3b is the UCI hydrogen station that, in 2019, regularly daily dispensed

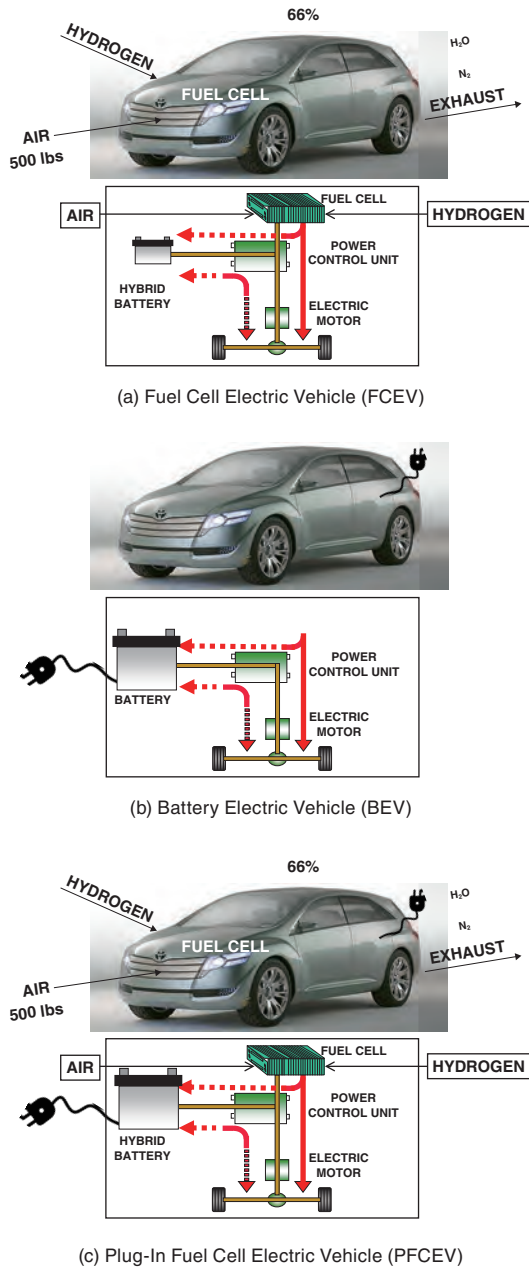
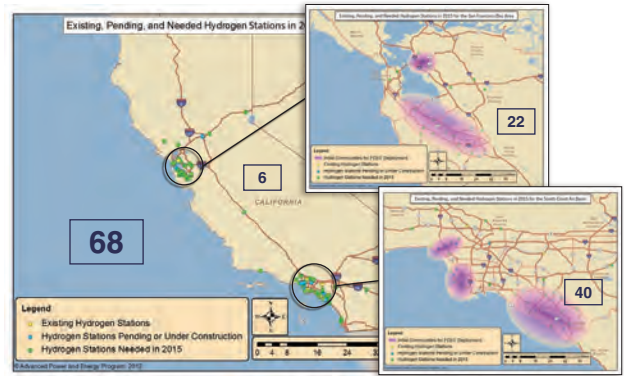


Figure 2 Zero-Emission Vehicles

in excess of 350 kg and served over 100 FCEVs with one fueling position. Also shown is a FirstElement Fuel station as an example of hydrogen dispensing at an established gasoline station in Long Beach. California has a target for 100 stations in 2020.

Currently, the state has 9,800 gasoline stations. Were all the vehicles PFCEVs in the state, it is estimated that 1,600 hydrogen stations would be needed to satisfy access. For FCEVs, the number of stations would likely double to meet the capacity required.^[4] The higher the percentage of PFCEVs, the fewer the number of stations over and above 1,600 that will be required.

While zero-emission vehicles themselves emit zero GHGs and zero criteria pollutants, the supply chains for



(a) Infrastructure Planning



(b) Hydrogen Stations

Figure 3 Hydrogen Fueling Infrastructure

electricity and hydrogen can be major sources of GHGs and criteria pollutants if not carefully planned. In Figure 4, various supply train scenarios are illustrated for the emission of CO₂.^[5] In addition to tailpipe emissions, CO₂ can also be emitted by the extraction of the fuel feedstock, the fuel production, the distribution of the fuel, and the manufacturing of the vehicle itself. Shown in the Figure at the top is the CO₂ signature associated with the CCV (25 miles per gallon ave) along with an arrow that conveys the overall goal to reduce the signature to zero. Yellow highlighted are the following scenarios worthy of note:

- **FCEV-H₂ from NG, Liquid.** While resulting in a reduction in CO₂ emission, the decrease is modest from what is required, demonstrating the need to harvest hydrogen from a renewable, zero-emission resource rather than from the historical dependence on natural gas (NG) as the source of hydrogen.
- **BEV-100% RE.** This scenario represents the epitome of clean transportation with both a zero-emission of CO₂ from the tailpipe and a 100% renewable

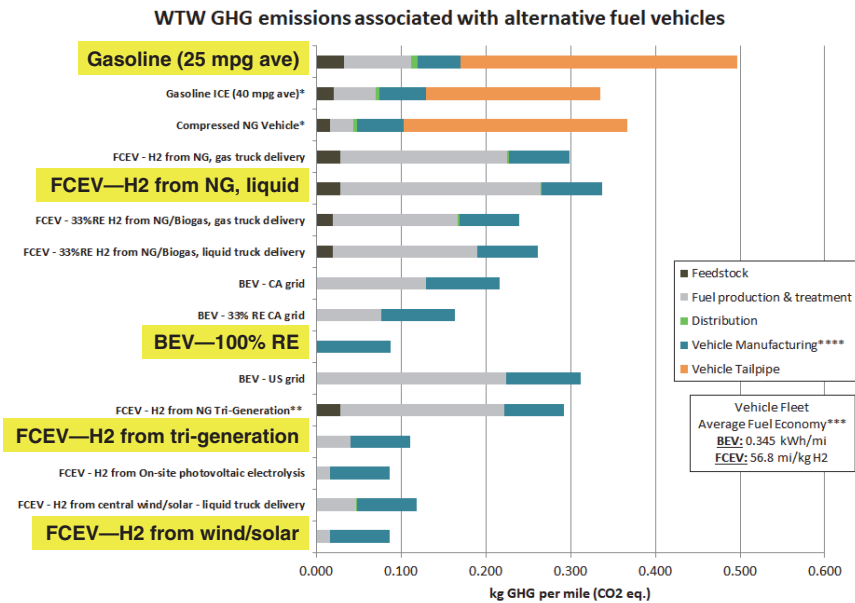


Figure 4 Life Cycle CO₂ Emission of Automobiles.^[5]

energy (RE) fuel (electricity) supply train. The focus for the residual CO₂ is directed to the manufacturing of the vehicle which is a challenge given the international sourcing of parts and assembly, and conveyance to the point of sale.

- **FCEV-- H₂ from Tri-Generation.** In this scenario, the hydrogen is sourced from human sewer waste using a technology described in the following section.
- **FCEV-- H₂ from 100% RE.** This scenario also represents the epitome of clean transportation with both a zero-emission of CO₂ from the tailpipe and a 100% RE fuel (hydrogen) supply train. In this scenario, the hydrogen is sourced from otherwise curtailed solar and wind, described in the following section. The remaining focus for CO₂ reduction is on manufacturing as well as fuel production.

With zero emission from the vehicle tailpipe, attention must be next directed to the fuel supply train for both electricity and hydrogen. While electricity will be clearly sourced from the electric grid, hydrogen will as well.

Electric Power

Historically, electric power is centrally generated at large, combustion powered plants in the general range of 100 to 1,000 MW. While hydro and nuclear contribute to varying degrees, combustion fueled by fossil fuels (natural gas, oil, or coal) has been the dominant strategy for the generation of electricity in the classic grid. The **first stage** in the paradigm shift from the classic form to a new configuration is shown in Figure 5a. Examples of the paradigm shift shown in Figure 5a include:

- **Renewable Power Generation.** At both the central and distribution levels, solar and wind generation resources are being deployed to generate renewable electricity. In California, for example, the penetration of renewable solar and wind resources has increased dramatically and is on course to meet a target of 60% in 2030.^[6]
- **Distributed Generation.** Distributed generation (DG) encompasses the generation of power at or in the vicinity of the customer on the distribution side of the utility, and is emerging as a strategy to improve the efficiency of power utilization, increase the reliability and resiliency of the power supply to the customer, and reduce the cost of energy to the consumer.

For example, DG provides the opportunity to capture and use heat that would otherwise be exhausted and fulfill additional customer needs such as hot water, space heating, steam, or chilled water. This capture and use of heat in this manner displaces the electricity and natural gas that would otherwise be required.

A second example utilizes a fortuitous attribute of the emerging DG technologies such as fuel cells, photovoltaic panels, and microturbine generators. Each produce direct current (DC). To serve the alternating current (AC) loads at the customer site, the DC is inverted to AC with an expense of energy of approximately 5-10%. In the new area of electronics, many major loads in buildings are DC powered loads such as computers, monitors, cable boxes,

modems, servers, and LED lighting. These DC loads are served historically by rectifying AC to DC with up to 50% lost in energy as heat, resulting in not only an inefficiency but an increased energy-intensive air conditioning load as well.

To support reliability and resiliency, DG allows the customer to remain in operation should the utility grid serving the customer experience an outage. While the customer might need to shed (“turn-off” or “drop”) some non-critical loads to balance the load with the operating DG, the breaker to the utility can be opened and thereby island the customer’s electricity operations. When the utility grid returns, the breaker can be closed. While easier said than done, islanding is a wave of the future and already implemented in many facilities around the world with the benefit of on-site DG.

- **Battery Storage.** Unfortunately, solar and wind do not produce electric power continuously. Both vary diurnally and produce varying amounts of electricity each day based on the meteorology (e.g., wind conditions and solar insolation). Solar and wind also experience intermittency, namely an abrupt reduction (e.g., a cloud passing over a solar panel, or a momentary decrease in wind) or over generation (e.g., a burst of wind). To manage the diurnal variation and intermittencies, the base load power plants (e.g., combustion power plants) must respond faster in the future than they do today, and electric battery storage must be deployed as shown in Figure 5a at both the central and distributed generation levels.

A **second stage** in the paradigm shift to a new configuration is the emerging load from plug-in BEVs and PFCEVs (Figure 5b). A challenge to electric utilities is the development of control strategies that can manage the charging to protect utility assets (e.g., transformers) and balance the vehicle charging load with the available generation. Efforts worldwide are addressing this challenge as well as evaluating the potential of the large batteries installed in plug-in vehicles to serve as a potential source of stored energy available to the grid upon command.

A **third stage** in the paradigm shift to a new configuration is the emerging deployment of stationary fuel cells as an alternative to combustion based generators for the 24/7 production of electricity (Figure 5c). With the deployment of diurnally varying and intermittent renewable solar and wind generation, the 24/7 plants must be operated more dynamically, namely ramping up and down in response to the varying renewable resources. Because combustion emits carbon dioxide and criteria pollutants

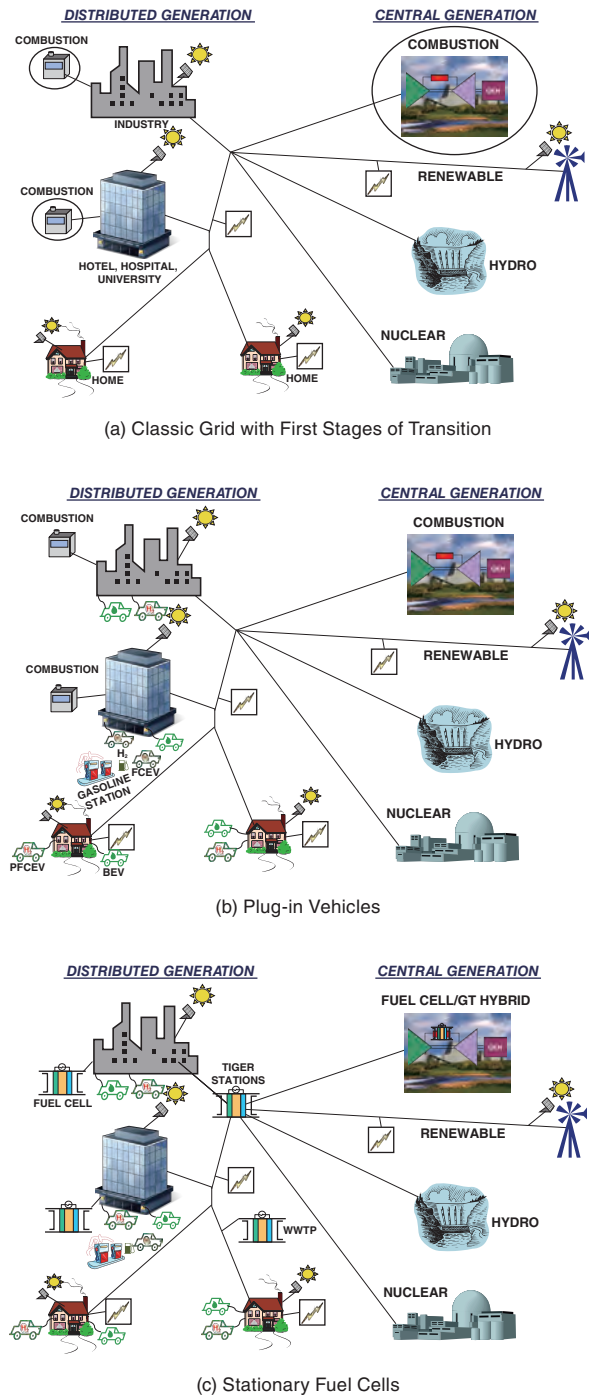


Figure 5 Electric Grid Evolution

as unavoidable byproducts, an alternative to combustion that can operate (1) more efficiently than combustion (thereby reducing CO₂ per megawatt-hour), (2) operate on a zero-carbon fuel (thereby emitting no CO₂), and (3) without the emission of criteria pollutants would be preferred. In parallel with vehicle power, stationary fuel cell technology is emerging as an alternative to combustion for the generation of electrical grid power. Like their vehicle counterpart, stationary fuel cells operate on hydrogen. Although thousands of miles of dedicated hydrogen pipelines are installed worldwide, hydrogen infrastructure is not today ubiquitous. As a result,

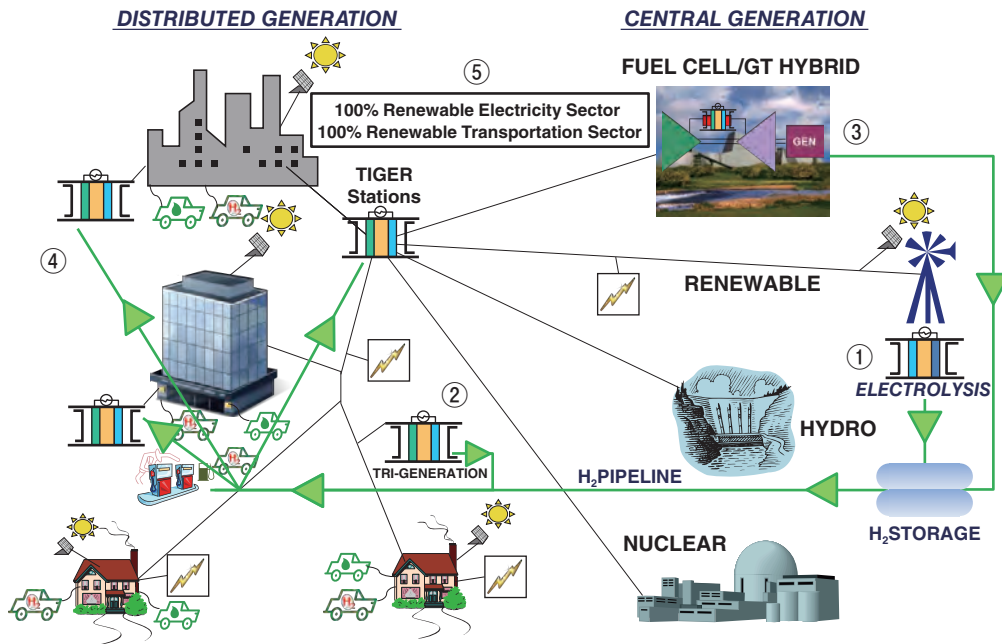


Figure 6 100% Renewable Energy Grid

stationary fuel cells today operate on natural gas or biogas, both rich in methane. Within the fuel cell system, the hydrogen is extracted from the methane using steam methane reformation. The fuel flexibility of stationary fuel cells is a major attribute, providing the flexibility to operate today on natural gas and bio gas, tomorrow on blends of natural gas and renewable hydrogen (described in the “fourth stage”), and eventually solely on renewable hydrogen.

In addition to high efficiency and zero-emission of criteria pollutants, fuel cells are quiet – a welcomed attribute for deployment as distributed generators in the midst of where the public resides and works.

Applications of stationary fuel cells on the customer side of the electric meter include industry, hotels, hospitals, university campuses, and waste water treatment plants (WWTP). Examples on the utility side of the meter are comprised of “Transmission Integrated Grid Energy Resource (TIGER) Stations” to provide local grid support.^{3 [7]} While concepts are under development for the deployment of hybrid fuel cell/gas turbine technology at 100 to 1,000 MW central generation power plants, pervasive deployment remains decades away.^[8] (The largest fuel cell plant deployed in 2019 was a 59 MW facility in Korea.)

*3: Side of the Meter. The customer side of the electric utility meter encompasses the circuits owned and managed by the customer. The utility side of the electric meter encompasses the circuits and electrical resources owned and managed by the utility.

Early markets adopting the stationary fuel cell power generation technology in the distribution generation regime include California, Korea, Japan, and the north-east of the United States operating on a combination of natural gas and biogas. In 2019, over 500 MW of stationary fuel cell product was deployed in the United States, and over 300 MW in Korea.^[9]

Notable in Figure 5c is the absence of combustion as a source of both grid electric power and vehicle power, representing the culmination of the paradigm shift from combustion-dominant electric grid and transportation sectors with the associated limited efficiencies and emission of criteria pollutants, to electrochemical-dominant electric grid with and transportation sectors with high efficiencies and virtually zero emission of local air pollutants such as nitrogen oxides. While notable, it is important to recognize that this paradigm, while zero in the emission of criteria air pollutants, may not be zero in the emission of carbon. If the fuel cells are operating on natural gas, biogas, or syngas, carbon dioxide will be generated in the reformation process and liberated in the exhaust. If the fuel cells instead are operated on renewable hydrogen (from otherwise curtailed solar and wind, for example), zero carbon will be emitted from the electric grid sector. In addition to the electric sector, a zero carbon source is required for hydrogen generated for the transportation sector. Hydrogen generated from steam reformation plants operating on natural gas will result in the emission of carbon dioxide. The hydrogen must instead be provided from a carbon-free source to result in truly 100% renewable electric grid and transportation sectors. This leads us to the fourth stage.

The **fourth stage** in the paradigm shift to a new configuration is the emerging role of renewable hydrogen (Figure 6). Solar and wind generation cannot load follow, generating instead whenever the “fuel” (sun or wind) is available. As a result, renewable wind and solar generators are “must take” resources. If the load is less than the renewable generation being produced, the solar and wind resources must be curtailed.^{*4} An option is to not curtail but rather continue to generate and store the renewable electricity for use at a later time when the demand calls.

*4: Curtailment is the action of reducing (in the extreme, turning off) the renewable wind or solar generation resource when load on the grid is insufficient to utilize the electricity that would otherwise be produced.

While electric battery and pumped hydro will play a role, a massive storage technology is needed to capture the massive energy projected from otherwise curtailed solar and wind, and overcome the limitations of pumped hydro (capacity) and electric batteries (degradation, cost, self-discharging, and inability to accommodate seasonal shifts in energy demand). Systems analyses consistently demonstrate that the generation of renewable hydrogen through electrolysis powered by otherwise curtailed solar and wind (① in Figure 5c) may fortuitously be the means to fill this need, providing the necessary capacity and seasonal shift capability in support of a 100% renewable grid.^[10] Once generated, the electrolytic renewable hydrogen can be stored by injection into the natural gas infrastructure or a dedicated hydrogen pipeline, and conveniently conveyed to the points of use such as fueling the new paradigm of fuel cell vehicles with carbon-free fuel, powering fuel flexible stationary fuel cells, and serving industry demands for hydrogen.

In addition to carbon-free electrolytic renewable hydrogen, the following sources are emerging to provide carbon-neutral renewable hydrogen:

- **Tri-Generation of Renewable Hydrogen.** Tri-Generation is a technology capable of generating carbon-neutral hydrogen using a stationary fuel cell operating on biogas produced at a WWTP②, a landfill that stores biodegrading human waste, or a dairy with large volumes of cow manure. The biogas powers a stationary fuel cell to produce carbon-neutral electricity and heat. By operating the fuel cell with more biogas than required for the electricity and heat alone, excess hydrogen is produced at the stack. This excess hydrogen can be extracted as a third product to serve a FCEV and PFCEV dispenser, or be stored in a natural gas or dedicated

renewable hydrogen pipeline for later use. At a WWTP or dairy, the renewable heat in the exhaust stream can be captured and used to provide the thermal energy required by digesters and thereby displace fossil-fuel boilers, further reducing CO₂ emissions. Tri-Generation is the epitome of sustainability, namely recovering and converting the energy from human and animal waste to renewable electricity, renewable heat, and renewable hydrogen.

- **Central Power Plant Generation of Renewable Hydrogen.** Fuel cell 100 to 1,000MW central generation power plants, operating on a mixtures of fossil fuels and biomass or entirely biomass as supply is available, are being designed to capture and utilize the exhaust heat for the co-production of hydrogen and capture the emission of carbon for sequestration③.^[11] While development of these integrated fuel cell/gas turbine hybrid systems are at least a decade in the future, the principle, technology, and economic viability are compelling.

The **fifth stage** in the paradigm shift to a new configuration is utilization of the stored renewable hydrogen. In addition to fueling fuel cell vehicles and fulfilling industrial needs, renewable hydrogen can be employed to power the deployed fleet of stationary fuel cells, giving rise to the ultimate clean (zero emission of both carbon and criteria pollutants), firm (24/7, load following) generator of renewable electricity as a complement to, and answer to diurnal varying and intermittent renewable solar and wind④.

Notable, Figure 6 represents the ultimate goal of both a **100% renewable electricity sector**, and a **100% renewable transportation sector**, merged into one cohesive paradigm⑤.

Summary

To address both climate change and the degradation in urban air quality, paradigm shifts in the electric and transportation sectors began in earnest at the turn of the 21st century, and will evolve over decades before settling into the new paradigm of both a 100% renewable electricity sector, and a 100% renewable transportation sector. The principal attributes of the new paradigms are:

- Electric drive-train vehicles powered by electric batteries alone, or electric batteries in combination with fuel cell engines, powered by locally sourced renewable electricity, renewable hydrogen, or a combination of both.
- The generation of renewable electricity from diurnal

- nally varying and intermittent wind and solar,
- The generation of renewable electrolytic hydrogen from otherwise curtailed wind and solar,
 - The complementary generation of renewable electricity from zero-carbon hydrogen powered stationary fuel cells with key attributes such as (1) zero emission of carbon and criteria pollutants, (2) provision of electricity 24/7, and (3) load following,
 - Energy storage (e.g., electric battery, pumped hydro, renewable hydrogen) to capture and later (from hours, to days, to weeks, to months, to seasons) utilize energy from otherwise curtailed renewable resources,
 - The electrification of transportation as a challenging grid load (on the one hand) and a potential source for the grid to tap for stored energy (on the other hand),
 - The integration of the (1) electric sector, (2) the transportation sector, and (3) a new paradigm of the hydrogen “battery,” namely:
 - The generation of renewable hydrogen from otherwise curtailed renewable solar and wind resources,
 - The storing and conveying of the renewable hydrogen by injection into existing natural gas infrastructure or through existing and new dedicated compressed hydrogen pipelines, and
 - The utilization of the renewable hydrogen for fueling fuel cell vehicles, powering clean, firm stationary fuel cells for the generation of renewable electricity to balance diurnal varying and intermittent wind and solar, and serving the hydrogen requirements for industry.
 - Fuel independence, removing the reliance on internationally sourced fossil fuels and associated geopolitics and conflicts.

References

- [1] Lane, Blake, Shaffer, Brendan, Samuelsen, Scott, *Plug-In Fuel Cell Electric Vehicles: A California Case Study*, International Journal of Hydrogen Energy, Vol 42, pp. 14294-14300, 2017.
- [2] Stephens-Romero, Shane, Brown, Tim M., Carreras-Sospedra, Marc, Kang, Jee E., Brouwer, Jacob, Dabdub, Donald, Recker, Wilfred W., Samuelsen, G. Scott, “*Projecting Full Build-Out Environmental Impacts and Roll-Out Strategies Associated with Viable Hydrogen Fueling Infrastructure Strategies*,” International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 36, pp. 14309--14323, 2011.
- [3] Brown, Tim, Stephens-Romero, Shane, Manliclic, Kersey, Soukup, James, Samuelsen, Scott. *Strategic Plan for the Rollout of Hydrogen Fueling Stations in California*. California Energy Commission. Publication Number: CEC-600-2015-005, 2015.
- [4] Lane, B., Shaffer, B., and Samuelsen, S. *A Comparison of Alternative Vehicle Fueling Infrastructure Scenarios*. International Journal of Hydrogen Energy, in review
- [5] Well-to-Wheels Greenhouse Gas Emissions of Advanced and Conventional Vehicle Drive Trains and Fuel Production Strategies, UCI Advanced Power and Energy Program, http://www.apecp.uci.edu/Research/WhitePapers/PDF/WTW_vehicle_greenhouse_gases_Public.pdf
- [6] California Energy Commission, Tracking Progress, 2018. https://www.energy.ca.gov/renewables/tracking_progress/documents/renewable.pdf
- [7] Shaffer, Brendan, Tarroja, Brian, and Samuelsen, Scott. *Dispatch of Fuel Cells as Transmission Integrated Grid Energy Resources to Support Renewables and Reduce Emissions*, Applied Energy, Vol. 148, pp. 178-186, 2015.
- [8] Rao, A.D., Samuelsen, G.S., and Yi Y., *Gas Turbine Based High Efficiency “Vision 21” Natural Gas and Coal Central Plants*, Proceedings of the I MECH E Part A, Journal of Power and Energy, Vol. 219, No. 2, pp. 127-136, 2005
- [9] Weidner, E., Ortiz Cebolla, R. and Davies, J., *Global Deployment of Large Capacity Stationary Fuel Cells – Drivers of, and Barriers to, Stationary Fuel Cell Deployment*, EUR 29693 EN, Publications Office of the European Union, Luxembourg, 2019. ISBN 978-92-76-00841-5, doi:10.2760/372263, JRC115923.
- [10] Saeedmanesh, A., Mac Kinnon, M. A., and Brouwer, J.. *Hydrogen is Essential for Sustainability*, Current Opinion in Electrochemistry 12, 166–181, 2018.
- [11] Li, Mu, Rao, Ashok, and Samuelsen, Scott, *Performance and Costs of Advanced Sustainable Central Power Plants with CCS and H2 Co-Production*, Applied Energy, 91, pp. 43-50, 2012.

系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム、 次世代“エネスワロー”の開発に向けて —エネルギービッグデータをコアとしたプラットフォームの構築—

Toward the Development of Next Generation “Ene-Swallow” as a Grid Cooperative/
Distributed Real Time Smart Energy System
- Information Platform Based on Energy Big Data -

伊原 学

Manabu IHARA

東京工業大学 物質理工学院 応用化学系 教授

博士（工学）

Professor

Department of Chemical Science and Engineering, School of Materials and Chemical Technology

Tokyo Institute of Technology

Ph.D.



パリ協定の合意以降、地球温暖化抑制のため、各国は高いCO₂排出量の削減が求められている。近年、太陽電池の発電コストは急激に低減し、今後、変動型の再生可能エネルギー由来の電源の増加が期待される。したがって、蓄電池や水素エネルギーなどの蓄エネルギー技術と高効率に運用するための高度制御、そして、管理するマイクログリッド内の分散型電源が集中電源と連携して系統の安定化をおこなう系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム（次世代“エネスワロー”）の開発が求められる。

After the Paris agreement, each country has to highly reduce CO₂ emission to prevent global warming. Because the power generation cost by power sources with renewable energy like solar cells had been drastically reduced in recent years, the ratio of variable renewable energy can certainly increase in the future. The both development of energy storage systems using battery and H₂ energy, and grid cooperative/distributed real time smart energy system (next generation “Ene-Swallow”) will be required.

はじめに：パリ協定後の両輪となる再生可能エネルギーと広義な蓄エネルギー技術

地球温暖化の抑制は、人類が将来にわたって解決すべき本質的な社会的課題である。COP21（第21回気候変動枠組条約締約国会議）におけるパリ合意によって、各国は産業革命以前のレベルに比べて将来の温度上昇を1.5～2℃以下に抑制することを目指している。日本では2030年までに2013年比で26%のCO₂排出量を削減し、2050年までには80%のCO₂排出量の削減を目標とする環境基本計画を閣議決定している。このような極めて高い削減目標の達成には、特に発電におけるCO₂排出量をほぼフリーにすることが必要となる。

発電時のCO₂排出量をほぼフリーにするカーボンフリー電源は、大きく分けて3つある。一つ目は、太陽電池、風力発電、水力発電、地熱発電などの再生可能エネルギーを活用した電源、二つ目は、天然ガスや石炭を燃料とする火力発電で生じたCO₂を回収し、深海や地層に隔離貯蔵するCCS

(Carbon dioxide Capture and Storage)によるCCS火力発電による電源、三つ目は、原子力発電による電源である。CO₂をCCSによって処理する技術は十分に実用レベルに達しているが、分離回収、圧縮、貯蔵場所への搬送にともなう追加的なCO₂排出、コスト負担が必要となる。また、廃棄物となるCO₂は自国にて隔離貯蔵することが原則となっていて、CCSに適した貯蔵場所は、日本では限定的と見られている。原子力発電は、福島発電所での事故以来、安全性対策に対するコスト増などによる経済的優位性の低下に加え、社会受容性の観点からも、日本においては大幅な拡大は難しい状況である。また、これら2つの電源は集中的な初期投資が必要で、その設備投資は長期に渡って回収するビジネス構造を持っているため、社会的要因の変化に対してビジネス計画の変更もしくは中止といった機動的な対応が難しいといった側面も持つ。

一方、太陽電池などの再生可能エネルギーによる電源は、これまでコスト高とみられていたが、太陽電池システム価格（Figure 1に日本、アメリカ、ドイツにおけるシステム価格の変化を示す。）は、特に2008～2013年の5年間で約半分

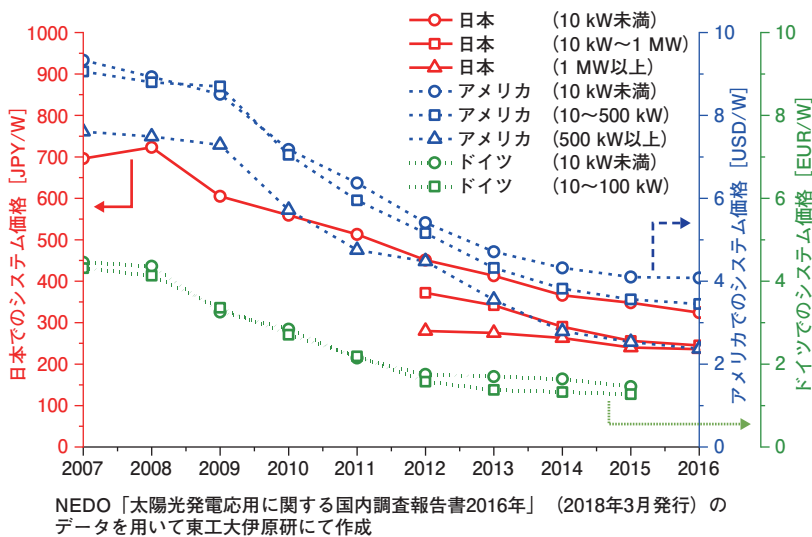


Figure 1 日本、アメリカ、ドイツにおけるシステム価格の変化

へと低下した。また、2016年には、日射時間の長いアブダビにおいて、メガソーラー発電所からの電力を2.42セント (US\$)/ kWh (Levelized Cost of Electricity : LCoE) もの低価格にて供給する契約の締結が報道されている。これらの現状と技術開発の可能性を考慮すると、CO₂排出量の削減と経済性の観点から、今後も太陽電池を中心とする再生可能エネルギー由来の電源が増えていくと予想される。太陽電池発電、風力発電などの電源は、天候に左右されやすく、分スケール、時間スケール、1日や季節によっても変動する変動型の電源である。電力を供給する電力グリッドでは、接続されている各種電源からの総発電量と、利用される総消費電力量が等しいことでグリッド内の電圧が維持されている。しかし、気象条件の急激な変化などによって変動型電源の発電量が大きく変動した場合、消費と供給のバランスが崩れ、大規模な停電が生じる危険性がある。現在は、火力発電の出力調整やエリア外への送受電、余剰電力で水をくみ上げる揚水発電などを使って調整しているが、調整力総量や手法はエリアによって様々である。今後はすべての電源の、より弾力的な経済負荷配分制御による調整力確保の議論が必要だが、同時に調整力として水素をエネルギー媒体として利用する発電技術や蓄電池技術が重要になる。つまり、地球温暖化抑制と経済性を両立させるためには、再生可能エネルギーの利用拡大が最も有力な手段の一つであり、さらに電力システムの安定化のためは、すべての電源の弾力的な運用と、カーボンフリー水素(製造時にCO₂排出がほとんどない水素)を含めた広義な蓄エネルギー技術の推進が求められる。

蓄エネルギー技術と位置付けられるグローバル水素とローカル水素^[1]

水素エネルギーはその役割、位置づけによって二つの水素に分類できる。CO₂排出削減という制約条件下で、エネ

ギー資源をグローバルに有効活用するための重要なオプションと位置づける「グローバル水素」と、変動型再生可能エネルギーを大量導入する際の電力平準化という制約下で、ローカルな蓄エネルギーとしての重要なオプションと位置づける「ローカル(蓄エネ)水素」に分類できる。グローバル水素では、水素を地球規模で輸送するため、液化水素、アンモニア、メチルシクロヘキサンなどのエネルギーキャリアを利用する。この場合、安価な太陽電池電力の利用や、CCSと組み合わせた安価な石炭(褐炭)の利用などのメリットがある。一方で、ローカル水素は、グローバル水素に必要な「エネルギーキャリア製造、脱水素」に関わるCO₂排出量およびコストが不要となるメリットを持つ。また、マイクログリッド内で、蓄電池とともにシステムの安定化

に貢献する蓄エネルギーシステムにもなりうる。蓄電池は、比較的短い時間スケールでの速い充放電に適したデバイスであり、水の電気分解によって水素を製造し、電力を水素として蓄える水素PtoG (Power to Gas) システムは長期間のエネルギー貯蔵に適していることがわかっている。

これら二種類のカーボンフリー水素エネルギーは、CO₂排出量低減の価値、蓄エネルギーの価値、エネルギー安全保障上の価値、新たな産業の創出や経済波及の価値など多様な価値を持つ。また、発電部門ではカーボンフリー水素のCO₂削減効果が高く、一方、自動車部門では、燃料電池自動車の輸出など、大きな経済波及効果を持つと試算されている。

再生可能エネルギーと多様なエネルギー由来の電源を機能させる系統協調／分散型エネルギーシステム

世界工学アカデミー エネルギー委員会では、将来のビル技術および自動車や鉄道などの移動体に関する将来技術を、5回のミーティングにて集中議論した。参加国は、日本のほか、インド、中国、韓国、イギリス、ドイツ、スイス、USA、カナダ、オーストラリア、南アフリカの各国であった。報告書では、将来はビル内および自治体などの比較的小規模な単位にて分散型の電源ネットワークを形成し、さらに集中型の大規模発電所と電力網を介して接続される技術が発展していくと予想されている^[2] (Figure 2に概要を示す)。一般的に、大量生産によって製造コストが低減できるように、燃料による発電システムでも、その規模が大きくなるに従って変換効率を向上しやすくなる。逆にその規模が小さくなると高効率化が困難になる。では、大型の集中発電システムと比較して、小型の分散型発電システムを導入するメリットは何であろうか。熱力学第一法則であるエ

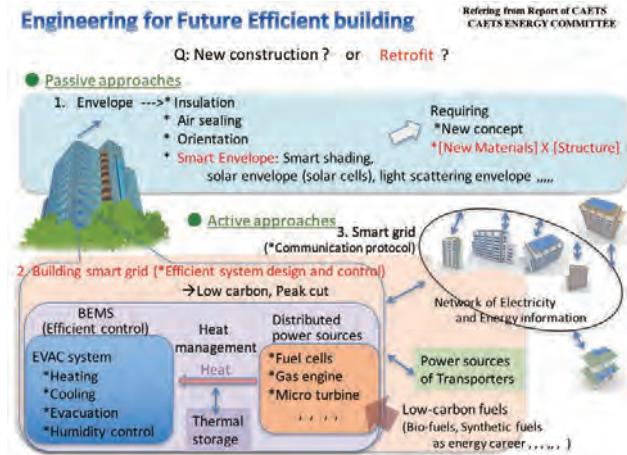


Figure 2 世界工学アカデミーエネルギー委員会提言された将来のビルエネルギー技術^[2]

エネルギー保存則は、化学エネルギーなどの内部エネルギー変化(ΔU)は、仕事(w)と熱(q)の総和になると教えている。つまり、燃料電池などで仕事(w)である電気エネルギーに変換した後、それ以外は熱となりエネルギーの総量は保存される。小型の分散システムにすることで、仮に化学エネルギーから電気エネルギーに変換する変換効率が低くなくても、排熱の利用を増加させることができれば、総合効率は向上する。一方で、電気エネルギーは送電線によって容易に送ることができるものの、熱はそのエネルギー密度も低く、特に遠方への輸送は難しい。したがって、エネルギー需要地に設置される分散型の場合、小型であっても熱の需要と供給を適切に合致させるシステム設計と高度制御ができれば、集中型の電源よりも総合効率を向上できる可能性がある。また、ハイブリッド自動車を実現したように、エネルギーデバイス機器の特徴を把握し、それぞれの機器の効率の高い条件での運用を複数のデバイスで分担利用するように制御できれば、大幅にシステム効率を向上できる。将来は、大規模な集中型発電システムと太陽電池、燃料電池、蓄電池などの様々な分散型電源が共存するエネルギーシステムになっていくと予想される。そして、水素は集中型、分散型双方で利用できるエネルギー媒体となる。

前述したように、電力系統は、適切な予測と計画的な運用による同時同量の需給バランスの維持によって、系統の電圧や周波数を維持している。したがって、今後、多量の中小様々な再生可能エネルギー由来の変動型電源が電力系統に接続される場合には、同時同量の需給バランスを維持する新たな仕組みが必要となる。そのため、中小様々な電源のPCS(power conditioning system, 直流電力を交流電力に変換する機器)をIoT(Internet of Things)技術を活用して統合し(エネルギーリソースアグリゲーション)、AI(Artificial Intelligence)技術による高度エネルギー予測に基づいたリアルタイム制御をおこなうことで、系統の安定化とマイクログリッド内の高効率制御を両立させるエネルギーシステムの開発が必要となる。このようなシステムを

我々は、“系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム”と呼んでいる。将来のエネルギーシステムでは、水素は集中型の発電所においてタービンの燃料として、あるいは、上記の系統協調／分散型システムが管理するマイクログリッド内では、蓄エネルギーシステムのエネルギー媒体として利用される。さらに、一部は燃料電池自動車に供給され、駐車時は電気自動車とともに電力グリッドに接続される。近年、AIやIoT技術の進歩に加え、通信速度の向上などによりクラウド／エッジコンピューティングのアーキテクチャの自由度も向上し、社会実装可能な上記エネルギーシステム構築への環境が整ってきた。今後、系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステムの開発と共通プラットフォーム化を、産官学が連携してすすめることが、未来のエネルギー社会実現に向けた大きな課題である。

系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム開発に向けた各種電池技術／建築技術／情報技術の融合

一環境エネルギーイノベーション棟と1.4 MW太陽電池／100 kW燃料電池／35 kW×3ガスエンジン／100 kWhリチウムイオン蓄電池を実際に制御するエネスワロー

著者らは、60%以上の低炭素化と電力自給自足が設計上可能で、かつ高い耐震性能を有するビルとして設計され、南壁面、西壁面、屋上が総枚数4570枚の太陽電池パネル(650 kW)で覆われた特長を有する東工大環境エネルギーイノベーション棟(EEI棟, Figure 3に外観写真を示す。)のエネルギー設備のシステム設計をおこなった。また、既存のエネルギー設備の双方向情報通信を可能とする分散型スマートエネルギーシステム“エネスワロー”(東工大にて商標登録)の開発もおこなってきたので以下に紹介する。エネスワローは、上記した「系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム」への発展を目指している^[3-8]。



Figure 3 東工大環境エネルギーイノベーション棟(EEI棟)の外観写真(大岡山キャンパス)

東京工業大学大岡山団地太陽光発電設備等設置配置図

太陽電池総容量: 1.388MW
赤色の建物の屋上に太陽電池が設置

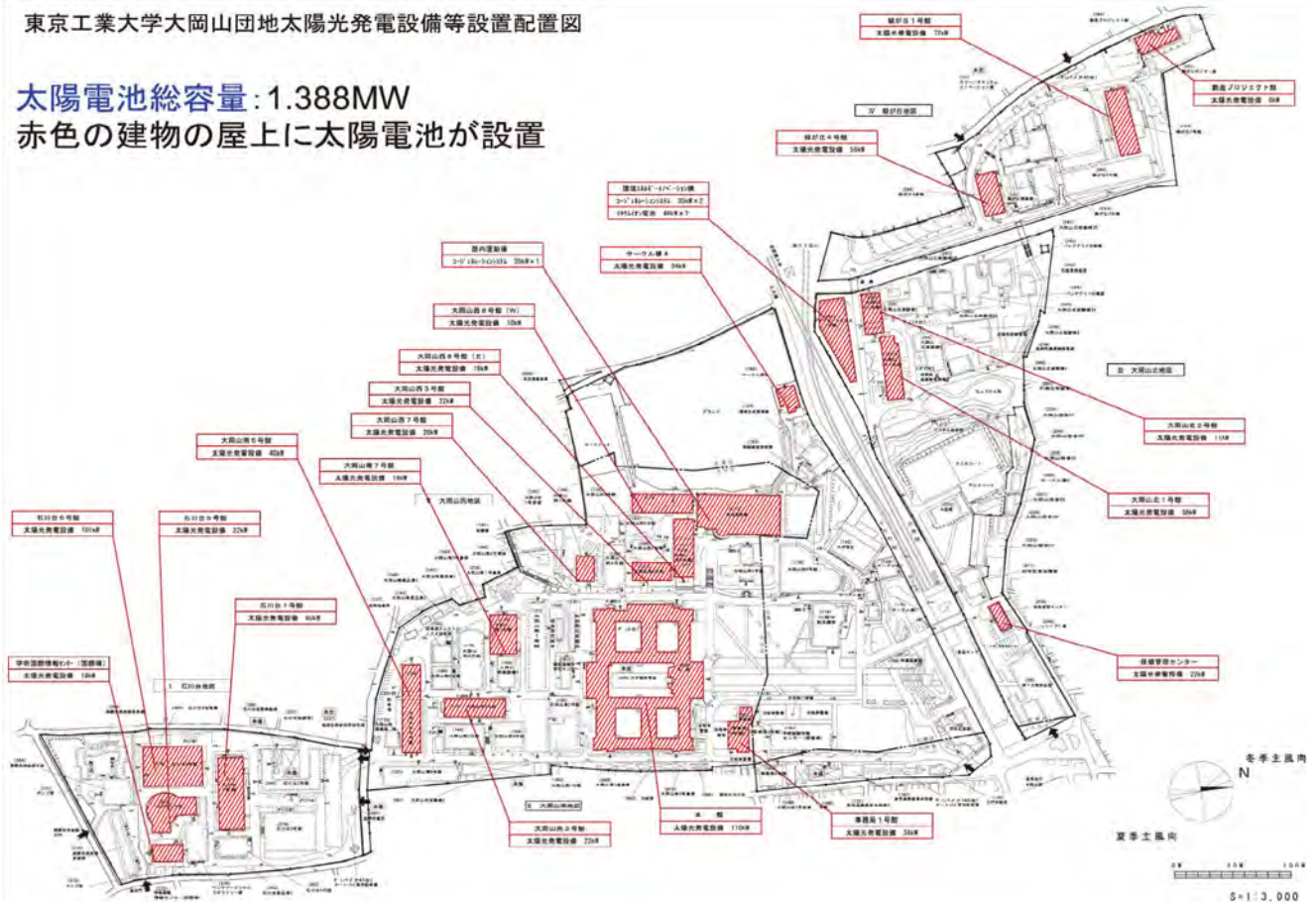


Figure 4 東工大大岡山キャンパスと太陽電池パネル設置位置

2015年には、エネルギーミックスと電力の平準化をおこなう機能を持つ“エネスワローver.3”を開発し、大岡山キャンパスにて運用を開始した。738 kWの太陽電池、105 kW (35 kW×3)のガスエンジン、96 kWh(48 kWh×2台)のリチウムイオン二次電池をキャンパス内に増設し、2012年に竣工したEEI棟の650 kWの太陽電池、100 kWの燃料電池、排熱を利用する空調機器などのEEI棟エネルギーシステムとも連携して制御をおこなう。したがって、大岡山キャンパスの太陽電池の発電容量は合計で約1.4 MWとなり、メガソーラー発電所に匹敵する発電容量を有している。これによって、ピークでは大岡山キャンパスの15~20%もの電力を、太陽電池を主とする分散電源で供給することが可能となり、一層のCO₂排出量の削減を実現している。

“エネスワローver.3” (現在はver 3.2までバージョンアップ)は、熱需要に応じた各分散電源の高効率運転をおこなうとともに、リアルタイムデータに基づく独自の電力予測式によってピークカット制御をおこなう。さらに、停電時には太陽電池、ガスエンジン、燃料電池、リチウムイオン二次電池の各分散電源が連携し、EEI棟に自立的に電力を供給することが可能で、災害時などの長期停電時でも永続的に自立運転を継続することができる。また、Figure 4に東工大大岡山キャンパスの地図を示す。赤色で示した建物屋上には太陽電池が設置されている。

季節、時間の発電量の平準化する太陽電池の設置

EEI棟の太陽電池は、限られた設置面積において発電量を最大化する高密度設置となっている。また、屋上、南面1、南2、西面の各方位に設置することで、時間、季節における発電量を平準化する設置としている (Figure 5に示す)。将来、システムの安定化を考慮すると、分散グリッド内で蓄電池や水電解/燃料電池によるローカル水素の利用によって、システムとやり取りする電力を平準化して供給するシステムが求められると考えられる。エネスワロー、エネルギーサーバーに蓄積されるエネルギーデータを使った解析によると、将来の蓄エネルギー (水素PtoGシステム) を考慮したトータルなシステムコストの最適化が、適切な太陽電池方位による設置によって実現できる可能性を提言している [9, 10]。

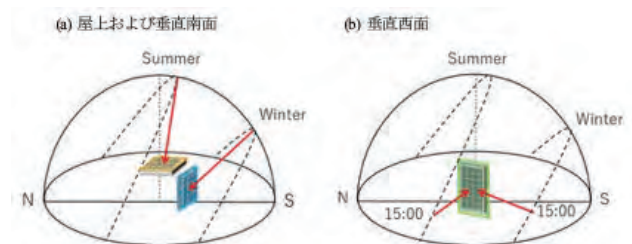


Figure 5 太陽電池の設置方位と太陽の軌道の季節変動性

エネスワローver.3.2の特徴

エネスワローver.3.2のトップ画面のスクリーンショットを示す(Figure 6)。また、下記にシステムの機能、特長を示す。

- ・エネスワローver.1はEEI棟内のエネルギー機器を制御、ver.2では、キャンパス全体の太陽光発電量のリアルタイム取得を実現し、エネスワローver.3では、ver.1, ver.2との相互連携、統合化が可能となった。
- ・msオーダーの高速で処理可能な制御エンジン部と1分ごとに処理するIEEE1888ストレージサーバーから構成されている。
- ・IEEE1888に規格化するマルチゲートウェイを採用し、BacNET/IP通信、TCP/IP通信、ModBus通信、DAIKIN DIII-NET通信、FTP通信、アナログ通信などの異なるプロトコルを有する多様なメーカーの機器を接続した実績を持ち、多種多様な機器からのエネルギーデータを集約取得することが可能である。
- ・既設のBEMS(Building Energy Management System)などを接続し、System of systemsの構成となっている。

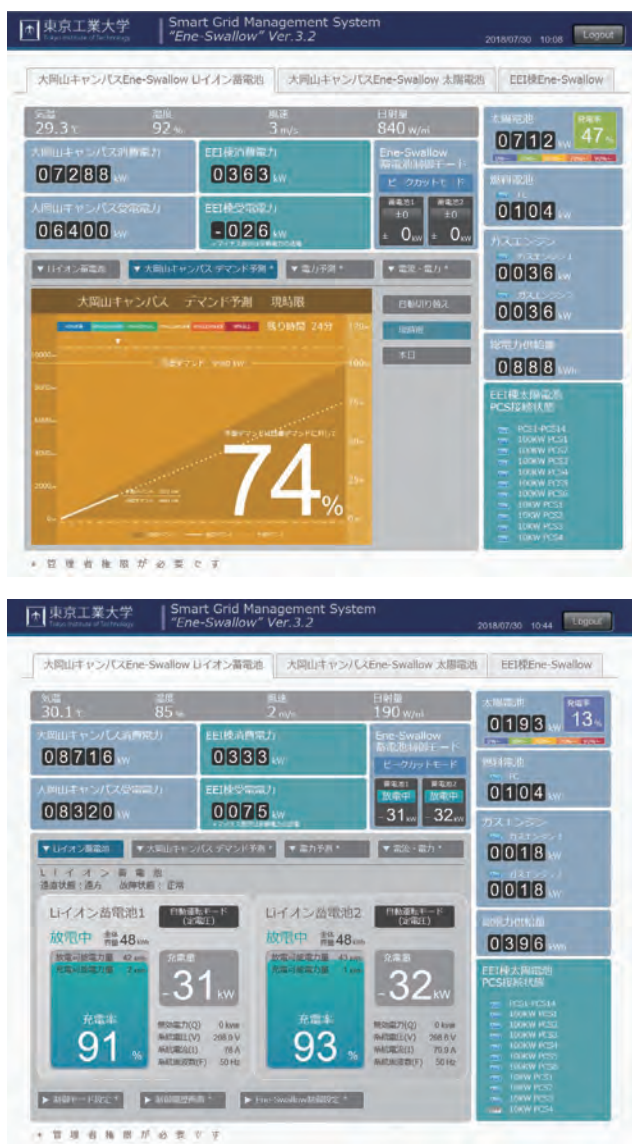


Figure 6 エネスワローver.3.2のトップ画面のスクリーンショット (上：30分後の受電量予測表示、下：ピークカット動作時の表示)

いる。

- ・BEMSが接続され、連携して燃料電池、ガスエンジンからの排熱を高度利用する制御をおこなう。
- ・外調器 風量も考慮したドラフトチャンバー電力按分計算式などを採用するなど、各機器のシステム原理から導き出される独自の按分式を使って、詳細でより正確な電力按分をおこなうことが可能であり、電力計を最小限にでき低コスト化が実現できる。
- ・太陽電池の各ストリングスについて、直流電流、直流電圧を計測し、PCSからのデータと比較表示する機能を有している。
- ・停電時には、エネスワローver.3が積極的に発電機と空調の電力量のバランスを自動的にとることで、二次電池と連携して自立運転をおこなう。
- ・リアルタイムデータに基づく「1. 30分ごとの電力量予測」、「2. 数分後の電力量予測」を独自開発した計算式で予測し、契約電力を超えないようピークカット制御をおこなう。
- ・空調の設定温度、計測温度、外気温度、受電量などから自動的に、かつユーザーに無理なく空調の負荷抑制をおこなう機能を有している
- ・空調の設定温度、計測温度、外気温度、受電量などが一定の条件を満たした場合、自動的にメール配信する機能を有している

おわりに：次世代“エネスワロー”の開発に向けて

—エネルギービックデータをコアとしたプラットフォームの構築—

東工大大大岡山キャンパスの契約電力は約10000 kwであり、リソースアグリゲーターが管理すると想定される規模と同程度である。また、以上述べたように、変動型再エネ電源である太陽電池、化石燃料を使い電力と熱を利用するコジェネレーション型の分散電源である燃料電池、ガスエンジン、蓄エネルギーデバイスであるリチウムイオン蓄電池がすでにエネスワローに接続されている。

2018年度から科学技術振興機構 未来社会創造事業「超スマート社会の実現」領域^[11]において、「低コスト社会実装を前提とした再エネ電源の大量導入を可能にする系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステムの開発」プロジェクトがスタートした。本プロジェクトでは、東工大大大岡山キャンパスを実験場とした研究拠点の形成を目指す。まず、電気自動車や燃料電池自動車を含めた様々な固定／移動型の電源が、次世代“エネスワロー”に接続するためのインターフェースの規格化などをおこなう。そして、管理するマイクログリッド内の分散型電源の個別の特長に合致した制御および、熱の利用を最大化する制御をおこなうとともに、エネルギービックデータを活用したAI解析に

よる、より高度な予測によって系統と連携して電力グリッドの安定化制御をおこなう「系統協調／分散型リアルタイムスマートエネルギーシステム」(次世代エネスワロー)の開発をおこなう。

このシステムは、多様な分野の研究者が開発に携わることが可能で、低コストで利用できるシステムであると同時に、様々なエネルギーデータやシミュレーションなどが接続されるエネルギー情報共通プラットフォームとして開発する。さらには、エネルギービックデータが活用されるAI解析を中心とするエネルギー予測情報システムが、物理モデルなどを用いて予測されるシステムと有機的にリンクされるシステム構造を想定している。このような、エネルギービックデータをコアとしたエネルギーデータ／シミュレーターを集約する情報プラットフォームへの展開を、産官学連携で推進していきたいと考えている。

謝辞

本研究の一部は、科学技術振興機構 未来社会創造事業「超スマート社会の実現」領域の支援によっておこなわれました。関係各位に感謝致します。

参考文献

- [1] 東京工業大学, 産業技術総合研究所, エネルギー総合工学研究所, 平成28年度～平成29年度成果報告書 水素利用等先導研究開発事業 トータルシステム導入シナリオ調査研究, http://www.nedo.go.jp/library/seika/shosai_201810/2018000000349.html
- [2] “TRANSITIONING TO LOWER CARBON ECONOMY—Technology and Engineering Considerations in Building and Transportation Sectors—”世界工学アカデミーエネルギー委員会(International Council of Academies of Engineering and Technological Sciences, CAETS energy committee)報告書, 2015年10月
<https://www.cae-acg.ca/caets-energy-committee-issues-low-carbon-building-and-transportation-study/>
- [3] 伊原学, ICTインフラの整備により変化するエネルギー管理の将来 その2「スマートグリッド“エネスワロー”と東京工業大学グリーンヒルズ構想」, 一般社団法人建築設備総合協会発行「BE建築設備」2014年9月号, (2014)
- [4] 伊原学, 低炭素化への取組み(1)都市と一体化する将来の分散型エネルギーシステムに向けた, 東工大“グリーンヒルズ構想”—エネスワローによるキャンパスのスマートグリッド化—, 公益社団法人空気調和・衛生工学会発行学会誌2014年5月号, 88(5), (2014), 9-15
- [5] 伊原学, 東工大“環境エネルギーイノベーション棟”の設備概要とスマートグリッド“エネスワロー”によるエネルギーデータの総合化, 建材試験情報, 50, (2014), 2-7
- [6] 伊原学, スマートグリッド管理システム“エネスワロー”によりエネルギーデータが統合化される“環境エネルギーイノベーション棟”, 日本設備設計事務所協会発行「設備設計」10月号, 49, (2013), 3-10
- [7] 伊原学, 環境エネルギーイノベーション棟のエネルギーシステムの概要, 今後のエネルギーシステムについての展望, 株式会社建築技術発行「建築技術」2012年10月号, (2012), 20
- [8] 伊原学, “東工大環境エネルギーイノベーション棟”の環境エネルギー設備とこれからのエネルギー, 「近代建築」2012年7月号, (2012)
- [9] 東京工業大学, NEDO水素社会構築技術開発事業 総合調査研究報告書「水素を利用した系統調整力の低炭素化に関する調査」(2019年3月)
- [10] Tatsuya Okubo, Teruyuki Shimizu, Kei Hasegawa and Manabu Ihara, “Techno-economic analysis of a 100% renewable energy system using photovoltaics and power-to-gas (P2G) technologies”, Extended Abstract of The World Hydrogen Technologies Convention (WHTC 2019), Tokyo, June 2-7, 2019
- [11] <https://www.jst.go.jp/mirai/jp/program/super-smart/index.html>

Cybersecurity of Battery Management Systems

バッテリーマネージメントシステムのサイバーセキュリティ

Madeline CHEAH

マデリン チー

Richard STOCKER

リチャード ストッカー

Automotive cybersecurity is a challenge that must be considered as part of the vehicle electrification movement. Cybersecurity of the Battery Management System (BMS) is of particular interest due to its critical role in vehicle functionality, performance and safety as well as its multiple connections to external systems. Despite this, it is a topic that has scarce coverage in literature to date. This paper discusses potential attacks on a generic conventional BMS, outlining the methods and consequences. It also explores the future BMS trends and how this may affect the nature of attacks, and the reach and magnitude of the consequences. Finally, it discusses possible mitigation strategies that if incorporated could reduce the likelihood and impact of potential cybersecurity problems for this system.

自動車のサイバーセキュリティは、自動車の電動化の動向に合わせて考えていく必要がある。バッテリー管理システム(BMS: Battery Management System)のサイバーセキュリティは、外部システムとの接続(通信)と同様に、車両の機能性、性能、安全性において、特に重要となる必須機能である。それにもかかわらず、今までほとんど取り上げられてこなかった。本稿では、一般的な従来のBMSに対する潜在的なサイバー攻撃について説明し、その方法と結果を概説する。また、将来のBMSの傾向が、サイバー攻撃の性質にどのように影響を及ぼし得るのか、さらに、その影響の範囲と規模について検討する。最後に、BMSを組み込む場合に、潜在的なサイバーセキュリティ問題にどのように対応することができるかについて、そのリスク軽減戦略について述べる。

Introduction

Historically, embedded systems were designed to operate in a tightly controlled environment, which required specialist knowledge to design, calibrate and deploy. However, the threat landscape has grown with the increasing number of microprocessors and complexity of software, along with the increase in functionality and growth of external-facing interfaces.

The discipline of cybersecurity deals with protecting digital systems from compromise. The foundations revolve around the central concepts of confidentiality, integrity and availability. This is often called the CIA triangle (see Figure 1).

Confidentiality is ensuring any information or data on a system is accessible only to those who are authorised.



Figure 1 The CIA Triangle

Integrity deals with the fact that data, information or the stream of data should not be modifiable without authorisation, and only by suitably authorised users. Availability is

about ensuring that systems and services are operational in a timely manner when needed for use. The assurance - which can loosely be defined as a declaration of confidence - of these three properties is broadly what it would mean for a system to be considered acceptably secure.

Automotive cybersecurity

Automotive cybersecurity is still a relatively novel field in mainstream automotive engineering.^[1] Previous engineering efforts have been focused on performance, efficiency and safety to comply with strict legislation.

There are several major developments which have contributed to the automotive threat landscape:

- Firstly, the presence of increased amounts of software, as well as the introduction of newer technologies such as artificial intelligence, which means that complexity of the system is compounded. Subsequently, testability (such as security testing) becomes an issue, and the likelihood of large numbers and severity of vulnerabilities increases.
- Secondly, advances made in wireless communication interfaces means that increased number of connections is possible. Now instead of physical access being required, only physical proximity is necessary (if that, since there are also long-range technologies being introduced into the vehicle). It also means that there are more externally accessible points for attackers to use (see Section Battery management systems).
- Lastly, impending legislation on the automotive world is also an issue - some of it is direct and some of it is in relation to Internet-of-Things (IoT) of which connected vehicles are considered a subset.

There have been many studies exploring the weaknesses that can be found in the vehicle, with demonstrations of attacks at system level, pivoting through the in-vehicular network,^[2, 3] at subsystem or component level,^[4] on externally facing interfaces such as WiFi or Bluetooth^[1] or on peripheral devices that connect to the on-board diagnostics (OBD-II) port.^[5]

In all cases, these demonstrations have leveraged vulnerabilities and weaknesses in the design of the system, the design of the protocols or the implementation thereof. Whilst the demonstrations show the need to consider cybersecurity in the vehicle, there is still much work to be done with regards to many systems in the vehicle. Here we focus on battery management systems (both current generation and future predictive architectures which also incorporate wireless connections) and the potential threats that these vehicular subsystems face.

Battery management systems

A battery management system (BMS) is an essential feature of automotive battery packs containing Li-Ion cells. Li-Ion cells are notoriously volatile when taken outside of their acceptable voltage^[6] and current^[7] limits, with these limits being strongly dependent on other battery cell states such as State of Charge (SoC) and temperature.^[8] This means that without careful control, dangerous situations can occur, as has been seen in battery cell test conditions.^[9, 10] The battery cell states themselves are also not straightforward to estimate, due to their 'black box' nature making them impossible to directly observe, instead requiring algorithms to estimate them from externally observable parameters such as cell temperature, voltage and current.^[11, 12] This is further complicated by significant changes in battery cells ability to store and transfer charge over lifetime, with this not only being affected by energy throughput but also time (with some level of degradation being an inevitable aspect of Li-ion cell function^[14]).

A BMS is also required to coordinate battery pack thermal management, important due to the high sensitivity of performance and safety to battery cell temperature, and defining the charging strategy, which is both integral to and dependent on how the pack capability changes due to degradation.^[15, 16]

Due to the complex usage requirements and operational sensitivity of Li-ion cells, the BMS has many roles, not least safety management. A key aspect of BMS functionality is defining current and voltage limits based on SoC and temperature and communicating these to the relevant control system (vehicle powertrain or external charger). Adherence to these limits from external control cannot be guaranteed, so the BMS also has the ability to physically break the electrical circuit through control of contactors within the electrical path of the pack. Monitoring the operation of the pack, identifying varying degrees of unacceptable or unknown behaviour, and deciding the appropriate course of action through contactor management and performance limit broadcasting, is a key aspect of BMS functionality.

All of the above combined necessitates a complex BMS with many tasks, requiring many sources of information and communication with both the externally controlled vehicle powertrain and external chargers. The components and architecture of a generic BMS (along with its connections to the wider system) is given in Table 1. Exact design varies between battery packs, but typically the architecture has one 'brain', the battery management controller (BMC), and many nodes acting as its senses, all managed by the battery management module (BMM).

Table 1 Battery pack component functionality and abbreviations (the keys refer to Figure 2)

Key	Component	Functionality	Abbreviation
1	Battery management controller	Data interpretation, state estimation and calculations, contactor control, power, current and voltage limits, safety analysis and shutdown	BMC
2	Battery management module	Sensor data interpretation, cell balancing, warning sensor calculation	BMM
3	Power relay assembly	Physical contactor operation, sends contactor status to the BMC	PRA
4	Current sensor	Senses current through the pack	-
5	Modules	Li-ion cell sensing (temperature and voltage)	-

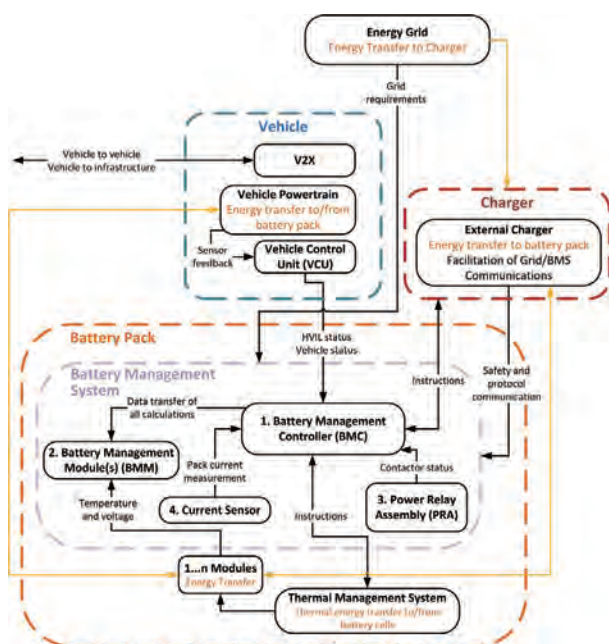


Figure 2 General architecture of a generic BMS and its relationship to the wider vehicular system.

Each of the BMS component functionality is given in Figure 2.

Future BMSs have to perform the same tasks as current generation systems but are made more complex by the fact that there are additional protocols that enable wireless communications (for example using Bluetooth^[35]) and that they require predicting what the states of operation and degradation are and instructing changes in component behaviour based on that calculation. These are discussed further in the next section.

Cybersecurity of the BMS

Of almost everything else in the vehicle, there are no other non-human controlled components that are considered so safety critical as the battery and systems associated with it. At this point in time, the literature regarding cybersecurity in this area is sparse. This could be due to

the fact that data regarding automotive components is usually treated as confidential, and that much attention has been taken up in the automotive security literature to date by the more externally facing systems such as the infotainment system. However, as the sophistication of battery management system increases, consideration as to what compromise might look like and the consequences it could have is essential.

As a package of electronics (with actuators, sensors and controllers), there is always hardware security of the BMS to be considered. Hardware Trojans, which are malicious modifications to a circuit (whether during the design or fabrication phases) are a danger. Susceptibility to such Trojans are due in part to globalisation of semiconductor processes, and where there are only early or partial solutions to a trustworthy (from a security point of view) global supply chain.

Trojans can be implemented as modifications to any circuit, microprocessor, digital signal processor or controller. Additionally, they could also come as firmware alterations, for example, to FPGA bitstreams.^[17] These Trojans can be externally activated (e.g. through sensors or antennas) or internally activated (e.g. either always on or through logic). They can take many forms and could affect anything from chip form factor, to modification of functions or illicit transmission of information.^[18]

The second general area which might be targeted is the data required for functionality as well as the connections which facilitate correct transmission of this information. As discussed previously, different kinds of connections (including wireless connections^[32-34]) are currently being explored and the security of these would also be paramount^[36]. In the next sections we give some examples of all of the above. This includes a discussion of a generic BMS, as well as potential future generations.

Generic BMS review

We outline in Table 2 some of the specific possible attack paths, with the possible failure states described. The target as stated in the table below is the theoretical aim of a malicious adversary. The context is to give some situational understanding as to how the attack might be carried out, and the possible methods give some specific examples (and is not limited to such a method only). The reaction is how the battery management system would react if such a scenario were to occur, and what would happen at system level, where we can more easily see the safety scenarios that might result.

There are also preliminary studies that suggest that environmental factors could affect the severity of the results

Table 2 Cybersecurity scenarios with regards to generic BMS

Target	Context	Possible method	Reaction	System results
<i>Compromise temperature sensors in the battery pack modules</i>	Requires physical access	Placing a resistor on the sensor line	BMC reduces limits, thermal management systems kick in and PRA opens contactors	Loss of power to vehicle
<i>Compromise voltage sensors in battery pack modules</i>	Requires physical access	Physical tampering (e.g. damaging the sensor line)	BMC would instruct PRA to open contactors.	Loss of power to vehicle.
<i>Remove connection between battery pack modules and BMM</i>	Requires physical access unless connection is wireless, in which case would likely require proximity	Causing a short circuit (physical) or jamming (wireless)	BMM sends a warning, BMC tells PRA to open contactors	Loss of power to vehicle
<i>Interfere with connection between BMC and BMM</i>	Requires physical access unless connection is wireless in which case would likely require proximity	Physical tampering or jamming	PRA opens contactors	Loss of power to vehicle
		Injection of invalid or random data	This would interfere with state estimation (e.g. charge instead of discharge), which would lead to abuse conditions. Possible BMS shutdown	Accelerated battery degradation. If all cells are tampered with, then safety issues are possible with overcharge or over-discharge. Loss of power to vehicle.
		Flooding	PRA opens contactors	Loss of power to vehicle.
<i>Modification of software that performs calculations on BMM</i>	Requires access to supply chain	Introduce error in software calculations or spoof incorrect voltages	Affect performance or shutdown the pack	Anything from battery degradation to loss of power and possible safety concern.
<i>Modification of software that performs calculations on BMC</i>			Could lead to overcharge, over-discharge, shutdown, and the BMC becoming not able to control the pack	
<i>Compromise random access memory</i>	Requires physical access or access to supply chain	Rowhammer attack ^[19] through compromised BMS (can cause memory cells to leak charge and electrically interact, which may also cause corruption or leakage from nearby memory rows)	Could lead to overcharge, over discharge or damage to cells	Battery degradation, BMS shutdown (Loss of power to vehicle)
<i>Disruption of scheduling routines on the BMC</i>	Requires access to the supply chain	Modification of controller software, or physical sabotage (e.g. using a non-spec chip with insufficient processing power)	Limitation of BMS functionality due to missing potentially crucial signals, eventually leading to shutdown	Loss of power to vehicle
<i>Modify the external charger</i>	Requires access to supply chain	Physical tampering of the charger	Incompatible charging leading to lack of charge to the vehicle.	Eventual loss of power to vehicle
<i>Compromise communication between BMC and external charger</i>	Requires physical access unless connection is wireless, in which case would likely require proximity	Spoof current request to external charger	Battery could be overcharged. BMC instructs shutdown	Loss of power to vehicle
<i>Compromise externally facing communication (CAN) to the BMC</i>	Requires physical access unless a wireless device is attached to the vehicle, or another ECU with a wireless interface is compromised (for example through pivoting)	Send "vehicle ignition" off signals into CAN bus	BMC instructs shutdown	Loss of power to vehicle
		Transmit a zero for HVIL value	BMC instructs shutdown	Loss of power to vehicle
		Fuzzing the BMC using CAN protocol (as the BMC performs handshakes via CAN with the charger)	BMC instructs shutdown	Loss of power to vehicle
<i>Compromise current sensor within the BMS</i>	Requires physical access	Spoof current to non-zero	Manipulates state of charge, which can trigger conditions for shutdown	Loss of power to vehicle
<i>Indirect compromise of the battery pack</i>	Requires access to the CAN bus	Disable or interfere with sub-vehicular systems with large battery usage (e.g. disable regenerative braking systems)	Eventual shutdown	Loss of power to vehicle Battery draining and degradation.

of any of the above attacks. For example, attacks launched with a pack that has high state-of-charge leads to more damage to the battery. Additionally, when looking at voltage controller compromise, due to the sublinear relationship of cell resistance increase with time, newer packs may be more vulnerable than older ones to depletion attacks.^[20]

In summary, many of the attacks could potentially lead to safety situations at systems level (loss of power during driving for example), as well as lead to battery degradation (either through total decrease in capacity, or degradation due to increased internal resistance in the cell) which could cost the owner of the vehicle financially. The problem would be exacerbated if several scores of vehicles were affected by a strategic adversary, for example, through compromise in the supply chain.

Since the BMC and BMM act as central components for the entire subsystem, compromise (for example through software modification or hardware trojans during manufacture) would in general mean a loss of integrity or availability of data from sensors, the calculations for state estimations, the scheduling routines and the lack of optimisation for cell balancing. Since an optimal range for voltage, state-of-charge, temperature and current are inter-dependent in keeping a cell operationally safe, forcing a state outside of all these parameters (using any or a combination of the attacks discussed above) may result in a situation where the default “shutdown” process (contactors opening) may not occur or is inadequate. This is the greatest risk of all, as thermal runaway could then occur, with all the attendant safety risks.

Predictive or intelligent BMSs

While current BMS technology often uses simple direct measurement algorithms, the next generation of BMSs looks to include predictive and optimisation capabilities. Much of the literature points to the use of machine learning techniques for areas such as state estimation^[12, 21] and connection to or at least use of data resulting from wider connectivity (taking again the example of connecting BMCs to the cloud) as a key enabler of predictive optimisation.^[22, 23]

This is a response to a combination of respect for the complexity of the states and degradation modes of Li-ion battery cells, and the limitation of simple on-board methods to sufficiently model these in all situations. Conventional methods such as SoC estimation through Open Circuit Voltage (OCV) observation, and SoC tracking through coulomb counting, are susceptible to measurement error and inaccuracies in cell data calibration, with no means of self-correction. To solve this issue, more

intelligent algorithms have been developed which can dynamically adjust their SoC estimation based on new cell information,^[24] comparing observed behaviour to that expected by on-board models connected to Kalman filters^[25] which allow both for error estimation and results correction.

These models work very well for new cells. As cells degrade however, methods must be applied to adapt on-board models that account for the resultant changes in cell capacity, resistance and stoichiometry. Cell ageing is very complex with several dependencies spanning both usage history and cell design, with a high level of nonlinearity and interaction effects^[13, 14] and information available limited to full battery cell external parameters such as voltage, current and temperature. This makes applying rigid, non-adaptive models very difficult, encouraging adaptive intelligent approaches.^[21-24] These approaches are free from the required simplicity of conventional models and can identify trends and patterns that can be used to predict and express the various aspects of degradation and can adapt control strategies accordingly.

Predictive capability of ageing is also required to evaluate integrated control problems. Fast charging without degradation presents a difficult challenge with multiple objectives e.g. avoiding lithium plating and temperature gradients,^[8, 15, 26] with cell susceptibility to these effects changing with cell ageing. Vehicle to grid functionality requires prediction of degradation with expected usage profile, so that it can be evaluated against the monetary benefit of participating.^[27]

Connected vehicle driving algorithms must consider several metrics, such as efficiency, range and lifetime, while evaluating different driving and route profile decisions. All of these require complex modelling and have therefore attracted machine learning research, eventually leading to multiple instances of interactive on-board intelligent and possibly unsupervised learning.

External controllers communicating with the battery management system, being vehicle control or grid integration, are also likely to have intelligent algorithms as part of their architecture.^[28] Due to the complexity of cell degradation and its path dependent nature, cloud computing methods have also been suggested to handle the large datasets and model sizes.^[23, 26]

There are many techniques used currently for state estimation including the use of artificial neural networks (ANNs), support vector machine (SVM), and genetic algorithms (GA) in combination with on-board models. Parameters such as battery terminal voltage, charging

Table 3 Additional review of possible future generation BMS

Target	Context	Possible method	Reaction	System results
<i>Machine learning algorithm for state estimation within the battery pack</i>	Requires access to training and test dataset	Poisoning the training set (e.g. deliberately performing aberrant automotive drive cycles during data acquisition), or changing the labelling of any dataset Poisoning the test dataset	Subsequent models would be inaccurate, causing misestimation of battery behaviour as states are not as transparent as when directly measured	Could compromise performance as optimisation might be inaccurate (e.g. thinking that the pack is newer than it is could lead to abuse of battery, or through the VCU have other effects such as loss of power)
<i>Compromising algorithms on the vehicle outside the battery pack</i>			Could compromise information given to the VCU which in turn gives incorrect information to the BMC	If BMS is predicting parameters such as range, this would lead to inaccurate optimisations at system level
<i>External intelligent algorithms (e.g. grid or charging stations)</i>	Charger is bidirectional	Charger could be compromised such that it tells the battery to continuously discharge	SoC goes to minimal level	Loss of power to vehicle
<i>Responses to environmental data</i>	Requires proximity to external facing sensors for environmental data Possible long-range action possible (e.g. through cellular and GPS)	Spoofing vehicle operation modes, spoofing environmental data that leads to incorrect conclusions about traffic data, interfering with GPS	Could compromise information given to the VCU which in turn gives incorrect information to the BMC	If BMS is predicting parameters such as range, this would lead to inaccurate optimisations at system level

current, discharge and surrounding temperature can be used in conjunction with one or a combination of these to estimate state of charge values without having knowledge of the internals of the battery.^[29] This can be extended to state of health measurement with knowledge of usage history.

This predictive capability has two implications from a cyber security perspective. Firstly, the lack of transparency in machine learning (whether it's the dataset or the explanations that led to an action) makes it hard to verify and trust. Secondly, connectivity opens up a once-closed system to potential malicious influence beyond what was already possible through physical access. We outline possible attack vectors and malicious actions that could be taken against a predictive or intelligent battery management system in Table 3.

Mitigations

A good way to ensure accuracy is using prior offline testing to characterise cell behaviour. Since this provides the reference data for the BMS controller algorithms, it is essential that the integrity of this data is considered and protected. Furthermore, protections (both in software and hardware) should be built such that the software on the BMS cannot be modified without appropriate authorisation.

A mitigation for compromise of any state estimation calculations could be to calculate these states in different ways and in different locations in the battery management system. These alternative ways would then be able to

cross-verify accuracy and robustness. Having multiple dimensions would also help with quantifying errors and error tolerance. Having a value outside of the tolerance could then be used as a good indicator of possible compromise. Note that this solution does come with the limitation in that sensors and measurements thereof is based on accumulation of history and may change throughout its lifetime. The optimal balance between changes observed is where the application of advanced techniques such as machine learning could be used.

In terms of considering BMS design, hardwiring should be considered a priority for the components of the BMS that could be considered safety triggers (e.g. temperature and current sensors). The response to an incident could also be designed such that immediate shutdown isn't the only safety measure. There is already work done to look at solutions that are not binary, such as backing off the current in stages,^[30] giving warnings instead of shutdowns (for example, if only one out of a multitude of similar signals is lost),^[31] or extend the time before a shutdown.^[30]

Broadening out to the system level, since everything in the vehicle is interconnected to varying degrees, defending the intra-vehicular network communications is also essential. The current CAN protocol has no defensive capabilities nor security properties: no verification as to identity of nodes take place, the communication is unencrypted, and the CAN network is sensitive to injection of invalid data or data rates due to its bus architecture. Future vehicular protocols promise to remedy such issues, but since components will remain connected, architectures and topologies should be reviewed such that the risk

of indirect compromise of the battery through inducing aberrant behaviour in systems with large battery usage is minimised.

Along with the specific safeguards and strategies that could be implemented at subcomponent or vehicle system level, we can see that many of the contexts in which an attack is possible involve access to components during the manufacturing process. This includes poisoning datasets, that are used for advanced techniques such as machine learning, tampering with the hardware or compromising sensors. This means that all the necessary requirements for security of the supply chain should also be considered, including knowing what possible assets might be, their value, who suppliers are as well as their level of maturity with regards to their own security arrangements. A risk driven approach can then be taken with regards to over-reliance, suppliers who have continually failed to meet security expectations as well as further communication and continuous improvement.

Finally, in terms of future BMS design, transparency will be a key feature. Since there are so many factors to balance and optimise, explainability (how algorithms come to a particular decision and what factors affect those decisions) will play a large part in testing, verification and - once integrated - communication with the larger system. This transparency is also beneficial for cybersecurity as it maintains a “human-in-the-loop” that would mean tampering, sabotage or other malicious modifications might be more apparent before it becomes a risk. Understanding the cybersecurity risks and potential attacks is also key to developing a secure testing platform which can be used to anticipate problems and verify that the system reacts appropriately.

Conclusions and Further Research

In conclusion, this discussion aims to highlight possible risks to the BMS from a cybersecurity perspective. We take the position here that whilst some attacks may seem infeasible to carry out, the safety impact of compromise requires that such considerations take place.

For future research, we would need to empirically validate such considerations on actual vehicles by carrying out the attacks as described above in controlled testing and simulation environments, using this to develop and quantify mitigation strategies. Characterisation and observation of any wireless protocols in use would also be useful in understanding where the exact attack vectors might be. This would need to be benchmarked with different battery management system designs or implementation. For future predictive capabilities, the more general research

area of security of artificial intelligence (currently an emerging topic) would need to be further explored and specific security strategies developed for this area of technology.

Despite the recommendations and mitigations discussed above, there are no absolute solutions in the cybersecurity world. However, by reviewing the state-of-the-art, including emerging technologies that may impact future battery management systems, we can anticipate possible risks, and thus take our understanding one step further in ensuring the security and safety of vehicles.

* This content is based on our investigation at this publish unless otherwise stated.

References

- [1] M. . Cheah, S. A. Shaikh, O. C. Haas and A. R. Ruddle, “Towards a systematic security evaluation of the automotive Bluetooth interface,” *Vehicular Communications*, vol. 9, no. , pp. 8-18, 2017.
- [2] K. Koscher, A. Czeskis, F. Roesner, S. N. Patel, T. Kohno, S. Checkoway, D. McCoy, B. Kantor, D. Anderson, H. Shacham and S. Savage, “Experimental Security Analysis of a Modern Automobile,” in *2010 IEEE Symposium on Security and Privacy*, Berkeley, CA, 2010.
- [3] S. Checkoway, D. McCoy, B. Kantor, D. Anderson, H. Shacham, S. Savage, K. Koscher, A. Czeskis, F. Roesner and T. Kohno, “Comprehensive experimental analyses of automotive attack surfaces,” in *Proceedings of the 20th USENIX conference on Security*, San Francisco, CA, 2011.
- [4] R. Verdult, F. D. Garcia and J. Balasch, “Gone in 360 seconds: Hijacking with Hitag2,” in *21st USENIX Security Symposium*, Bellevue, WA, 2012.
- [5] M. Cheah, J. W. Bryans, D. Fowler and S. A. Shaikh, “Threat Intelligence for Bluetooth-Enabled Systems with Automotive Applications: An Empirical Study,” in *3rd Workshop on Safety and Security in Vehicles (SSIV): Dependable Systems and Networks Workshop (DSN-W) 2017*, Denver, 2017.
- [6] A. W. Golubkov, S. Scheickl, R. Planteu, G. Voitic, H. Wiltsche, C. Stangl, G. Fauler, A. Thaler and V. Hacker, “Thermal runaway of commercial 18650 Li-ion batteries with LFP and NCA cathodes

- impact of state of charge and overcharge,” *Royal Society of Chemistry*, vol. 5, pp. 57171-57186, 2015.
- [7] P. Keil and A. Jossen, “Charging protocols for lithium-ion batteries and their impact on cycle life - An experimental study with different 18650 high-power cells,” *Journal of Energy Storage*, vol. 6, pp. 125-141, 2016.
- [8] S. Tippmann, D. Walper, L. Balboa, B. Spier and W. G. Bessler, “Low-temperature charging of lithium-ion cells part I : Electrochemical modeling and experimental investigation of degradation behavior,” *Journal of Power Sources*, vol. 252, pp. 305-316, 2014.
- [9] Q. Wang, P. Ping, X. Zhao, G. Chu, J. Sun and C. Chen, *Thermal runaway caused fire and explosion of lithium ion battery*, vol. 208, 2012, pp. 210-224.
- [10] F. Larsson, P. Andersson, P. Blomqvist, A. Lorén and B. E. Mellander, “Characteristics of lithium-ion batteries during fire tests,” *Journal of Power Sources*, vol. 271, pp. 414-420, 20 12 2014.
- [11] Y. Zhou and X. Li, “Overview of lithium-ion battery SOC estimation,” *2015 IEEE International Conference on Information and Automation, ICIA 2015 - In conjunction with 2015 IEEE International Conference on Automation and Logistics*, no. August, pp. 2454-2459, 2015.
- [12] N. Watrin, B. Blunier and A. Miraoui, “Review of adaptive systems for lithium batteries state-of-charge and state-of-health estimation,” in *IEEE Transportation Electrification Conference and Expo, ITEC 2012, no. 3, 2012*, London, 2012.
- [13] S. F. Schuster, T. Bach, E. Fleder, J. Müller, M. Brand, G. Sextl and A. Jossen, “Nonlinear aging characteristics of lithium-ion cells under different operational conditions,” *Journal of Energy Storage*, vol. 1, no. 1, pp. 44-53, 2015.
- [14] J. Vetter, P. Novák, M. Wagner, C. Veit, K.-C. Möller, J. Besenhard, M. Winter, M. Wohlfahrt-Mehrens, C. Vogler and A. Hammouche, “Ageing mechanisms in lithium-ion batteries,” *Journal of Power Sources*, vol. 147, no. 1-2, pp. 269-281, 2005.
- [15] T. Waldmann, M. Kasper and M. Wohlfahrt-mehrens, “Optimization of Charging Strategy by Prevention of Lithium Deposition on Anodes in high-energy Lithium-ion Batteries - Electrochemical Experiments,” *Electrochimica Acta*, vol. 178, pp. 525-532, 2015.
- [16] P. Keil and A. Jossen, “Charging protocols for lithium-ion batteries and their impact on cycle life - An experimental study with different 18650 high-power cells,” *Journal of Energy Storage*, vol. 6, pp. 125-141, 2016.
- [17] M. Tehranipoort and F. Koushanfar, “A Survey of Hardware Trojan Taxonomy and Detection,” *IEEE Design and Test of Computers*, vol. 27, no. 1, pp. 10-25, 2010.
- [18] R. Chakraborty, S. Narasimhan and S. Bhunia, “Hardware Trojan: Threats and emerging solutions,” in *IEEE High Level Design Validation and Test Workshop*, San Francisco, CA, 2009.
- [19] R. Qiao and M. Seaborn, “A new approach for rowhammer attacks,” in *Proceedings of 2016 IEEE International Symposium on Hardware Oriented Security and Trust*, McLean, VA, 2016.
- [20] S. Sripad, S. Kulandaivel, V. Pande and V. Viswanathan, *Vulnerabilities of Electric Vehicle Battery Packs to Cyberattacks*, arXiv preprint arXiv:1711.04822, 2017.
- [21] X. Hu, S. E. Li and Y. Yang, “Advanced Machine Learning Approach for Lithium-Ion Battery State Estimation in Electric Vehicles,” *IEEE Transactions on Transportation Electrification*, vol. 2, no. 2, pp. 140-149, 2015.
- [22] M. Abdul-Hak, N. Al-Holou and U. Mohammad, “Predictive Intelligent Battery Management System to enhance the performance of electric vehicles,” in *Electric Vehicles - Modelling and Simulations*, S. Soylu, Ed., InTech, 2011, pp. 365-384.
- [23] R. Xiong, L. Li and J. Tian, “Towards a smarter battery management system: A critical review on battery state of health monitoring methods,” *Journal of Power Sources*, vol. 405, no. 30, pp. 18-29, 2018.
- [24] F. Han, K. See, Y. Feng, X. Yu and X. Yi, “Online SoC Estimation for Li-ion Batteries: A survey,” in *12th IEEE Conference on Industrial Electronics and Applications*, Siem, Reap, 2017.
- [25] K. Stetzel, L. Aldrich, M. S. Trimboli and G. Plett, “Electrochemical state and internal variables estimation using a reduced-order physics-based model of a lithium-ion cell and an extended Kalman filter,” *Journal of Power Sources*, vol. 278, pp. 490-505, 2015.
- [26] A. Hoke, A. Brissette, K. Smith, A. Pratt and D. Maksimovic, “Accounting for Lithium-Ion Battery Degradation in Electric Vehicle Charging Optimization,” *IEEE Journal of Emerging and Selected Topics in Power Electronics*, vol. PP, no. 99, 2014.
- [27] D. Wang, J. Coignard, T. Zeng, C. Zhang and S. Saxena, “Quantifying electric vehicle battery degradation from driving vs. vehicle-to-grid services,” *Journal of Power Sources*, vol. 332, pp. 193-203, 2016.
- [28] R. Abduljabbar, H. Dia, S. Liyange and S. A. Bagloee, “Applications of Artificial Intelligence in Transport:,” *Sustainability*, vol. 189, no. 11, 2019.
- [29] V. Mishra, A. R. Kodakkadan, R. Koduri, S. Nandyala and M. Manalikandy, “Wireless Charging for EV/HEV with Prescriptive Analytics, Machine Learning, Cybersecurity and Blockchain Technology: Ongoing and Future Trends,” SAE International, 2019.
- [30] W. Kong, Y. Luo, Y. Qi and Y. Wang, “Full Protection Scheme and Energy Optimization Management of the Battery in Internal Combustion Engine Vehicles Based on Power Partitioning Model,” *SAE Technical Paper*, Vols. 2019-01-1205, 2019.
- [31] J. Xie, J. Chen, L. Li and Y. Chen, “Advanced battery early warning and monitoring system”. US Patent US9454888B2, 27 09 2016.
- [32] D. E. Alonso, O. Opalko, M. Sigle and K. Dostert, “Towards a Wireless Battery Management System: Evaluation of Antennas and Radio Channel Measurements Inside a Battery Emulator,” in *IEEE 80th Vehicular Technology Conference*, Vancouver, 2014.
- [33] M. Schneider, S. Ilgin, N. Jegenhorts, R. Kube, S. Püttjer, K. Riemschneider and J. Vollmer, “Automotive Battery Monitoring by Wireless Cell Sensors,” in *IEEE International Instrumentation and Measurement Technology Conference*, Graz, 2012.
- [34] C. Shell, J. Henderson, H. Verra and J. Dyer, “Implementation of a Wireless Battery Management System (WBMS),” in *IEEE International Instrumentation and Measurement Technology Conference*, Pisa, 2015.
- [35] G. D. Maso-Gentile, A. Bacà, L. Ambrosini, S. Orcioni and M. Conti, “Design of CAN to Bluetooth gateway for a Battery Management System,” in *12th IEEE International Workshop on Intelligent Solutions in Embedded Systems*, Ancona, 2015.
- [36] G. Kwon, J. Kim, J. Noh and S. Cho, “Bluetooth low energy security vulnerability and improvement method,” in *IEEE International Conference on Consumer Electronics-Asia*, Seoul, 2016.



Madeline CHEAH

マデリン チー

Cybersecurity Innovation Lead
Horizon Scanning
HORIBA MIRA Ltd.
Ph.D.



Richard STOCKER

リチャード ストッカー

Energy Systems Innovation Lead
Horizon Scanning
HORIBA MIRA Ltd.

Considering Li-Ion Battery Cell Ageing in Automotive Conditions

車載リチウム・イオン電池の劣化についての考察

Richard STOCKER

リチャード ストッカー

Puneet MATHUR

プニート マサー

Asim MUMTAZ

アシム マムタズ

Neophytos LOPHITIS

ネオフィトズ ロフィティス

This paper explores how to understand and use knowledge of cell ageing in automotive conditions. The key problems and considerations of ageing are considered, followed by an explanation of their causes. This is then used to discuss the tools and understanding required for including this in context of electrified vehicles design and control. What is shown is that ageing is complex, and the dominant underlying causes depend on cell design and usage throughout lifetime. To characterize this, testing, simulation and control approaches must combine, with methods for each of these discussed and evaluated. With future industry trends to higher energy density chemistries, longer pack usage and second life applications, sufficient degradation tools will become even more important in future.

本稿では、車載時の電池劣化の知識をどのように理解し使用するかについてその方法を説明する。劣化の主要な課題とその原因について説明し、劣化を考慮した電動化車両の設計と制御に求められるツールと考え方について議論する。ここで明らかにしたいことは、劣化の複雑さと、その根本的な原因が電池設計とライフサイクルを通じた使用法に依存しているということである。劣化を特徴づけるためには、試験、シミュレーション、および制御アプローチを組み合わせ、これらを議論し評価する必要がある。高エネルギー密度の電気化学の進歩に伴って、電池の長寿命化、生活電源への応用、劣化度評価ツールは今後ますます重要になると考えられる。

Introduction

With vehicle electrification being a key contemporary engineering concern^[1, 2], it is of great importance to understand the performance, efficiency and longevity of Li-ion cells used in automotive battery packs. Li-ion cell durability is essential to understand for development of pack architectures, battery management systems (BMS) and warranty condition criteria. Unfortunately battery cell ageing is very complex^[3, 4], being dependent on cell chemistry, design and usage conditions^[5, 6]. This is further complicated by the fact degradation occurs within a battery cells chemically active materials invisible to the user during operation, making the cells effectively a 'black box'. Instead, any BMS must rely on inferring a cells current health through indirect means such as its voltage response to current, and its temperature behavior on the surface and terminals. This makes battery cell ageing estimation a difficult challenge, which requires a multitude of tools to effectively estimate, predict and mitigate.

The performance of a Li-Ion cell can change in several different ways as it evolves through its usable life. A common and important aspect of degradation is reduction in the cells ability to store charge, also known as 'capacity fade', effectively reducing vehicle range and energy density, as well as causing mis-estimation in a BMS that does not account for this effect.

A battery cells charge transfer impedance can also change with time and usage, affecting voltage response to a given current. This can limit power capability through earlier reaching of voltage limits, reduces energy transfer efficiency, and increases demand of any pack cooling system present. This change in impedance can be harder to quantify than capacity. Impedance itself is a function of cell states, such as State-of-Charge (SoC) /temperature, and the relative change in impedance may not be uniform across the range with ageing. It can be further complicated by the fact there are several contributions to impedance which do not necessarily change in the same way^[7].

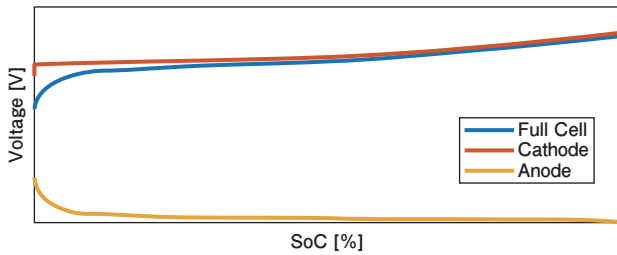


Figure 1 Example Cell Stoichiometry OCV-SOC Relation

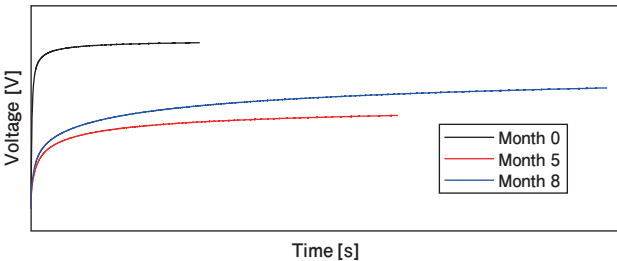


Figure 2 Evolution of relaxation from discharge example horiba mira cell data

While capacity and impedance changes dictate the strongest changes in cell performance, more subtle changes also occur which can affect a BMS's ability to estimate and control cell behavior. When new, each cell has a defined relationship between its Open Circuit Voltage (OCV) and SoC. This relationship is a function of its positive and anode chemistries but is also a relationship of cell design, through their relative sizes and lithiation balance^[8], as shown in Figure 1. While electrode chemistries do not significantly change with degradation, the balance between electrodes does, affecting OCV. If this is not accounted for, then errors can develop in a system through mis-calculation. Another aspect that can change with ageing is the cells time taken to relax after current is applied, as shown in Figure 2. If this is not accounted for, then algorithms using open circuit voltage may drift due to incorrect assumption of cell relaxation. What is inferred by this, is that simple estimation of cell ageing symptoms is not sufficient to fully adjust control strategy with ageing, but more complex analysis is required, linked with an understanding of the underlying causes.

Li-Ion Degradation Causes and Usage Factors

As mentioned previously, cell ageing depends on both the design and manufacture of the battery cells, as well as the conditions they are exposed to during their lifetime. The reason for this, is that there are a multitude of ageing mechanisms within a battery cell, each with different causes and effects. In this section, the main effects are discussed along with their influences and impacts. A diagram summarizing the interactions and sensitivity of degradation mechanisms to usage is shown in Figure 3.

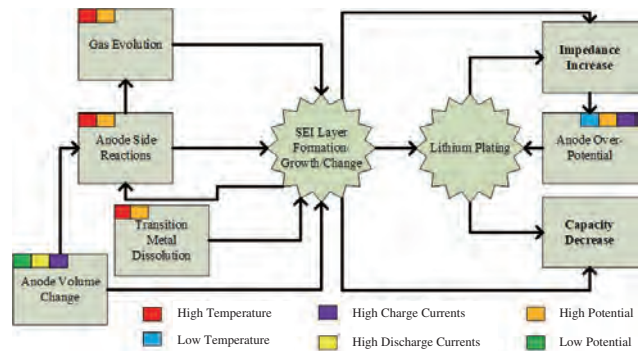


Figure 3 Illustration of ageing mechanism interactions in Li-Ion cells

Solid Electrolyte Interphase (SEI) layer formation is regarded as the main ageing mechanism in Li-Ion battery cells for capacity loss^[9, 10]. At the potentials in which a cell operates, the electrolyte and anode are inherently unstable^[3, 11], causing reduction reactions to occur. The reaction products form an SEI layer on the anode, providing a barrier to further damaging reactions^[12,13]. This layer primarily forms in specially designed 'formation' cycles used to ensure a safe and reliable cell during the manufacturing process. It is however, never completely protective, slowly growing during cycling and even during storage conditions^[14-16]. This growth consumes cyclable lithium and adds extra impedance to Li-Ion intercalation at the electrolyte-anode interface.

For conventional Li-Ion cells, forming of this layer is unavoidable, leading to gradual cell deterioration through loss of cyclable lithium and increase in cell impedance^[17, 18]. The rate at which it develops however is influenced by cell design and usage. Increasing temperature accelerates reaction rates, increasing the formation of the layer^[10, 15, 19-21]. High SoC values increase the potential difference to the anode also increasing the rate of layer formation^[4], particularly at very high SoC^[14]. Cell design also has an influence, with higher anode porosity providing a larger surface area necessitating more SEI to form^[3, 17]. Cell chemistry is also important, particularly of the anode. While graphite electrodes will always see this mechanism, Lithium Titanate Oxide (LTO) operate at higher potentials, making them immune to this mechanism^[22-24]. The higher potential of the LTO anode however comes at the expense of lower cell voltage and therefore energy density, limiting their use in full electric vehicle applications.

Another important mechanism is lithium plating on the surface of the anode during charge, as shown in Figure 3. Unlike SEI, this can be avoided because it is only occurring if the potential of the anode reaches 0 V vs Li/Li⁺^[25]. The consequences if it occurs however are more damaging to cells, leading to rapid capacity fade and impedance increase. As anode potential under load is proportionally

dependent on its impedance, this ageing mechanism becomes much more likely at low temperatures where impedance increases^[4]. For the same reason, it is also more likely at higher SoC, with higher impedance conditions and lower anode resting potential conditions exist, making exceeding the threshold for lithium plating more likely. Increasing charge current also increases likelihood, due to the associated higher drop in anode potential. Overall, chance and extent of lithium plating depends on a combination of temperature, SoC and charge current. Cell design also plays a role, with larger anode surface area decreasing average current density, thus decreasing lithium plating^[26, 27]. Oversizing the anode relative to the positive also reduces likelihood of lithium plating, by limiting the maximum lithiation of the anode^[28, 29]. As with SEI, changing the anode chemistry can mitigate this effect, with LTO cells being much less susceptible^[30].

Several other ageing mechanisms can occur based on extreme conditions of the usage range. Below 20% SoC, the anode can shrink by 10%, which can cause cracks to form^[26]. On subsequent expansion, this can create gaps in the SEI layer, encouraging further reduction reactions to occur^[15, 17, 26, 31]. At high SoC, the positive electrode can oxidize with the electrolyte, particularly for modern high nickel compounds^[32, 33]. These oxidation products can then migrate to the anode, increasing SEI layer resistance^[3, 9] and encouraging further layer growth^[31]. Permeable layers can also form on the positive electrode due to oxidation reactions, having a strong contribution on resistance^[9, 15]. The electrolyte can also degrade, increasing ohmic resistance^[34] and increasing internal pressure through gas evolution^[35].

What can be shown from this, is that while there are two main ageing considerations, SEI layer formation and lithium plating, there are several other degradation aspects, which all have separate and unique contributions to cell performance changes such as capacity, impedance, stoichiometry and dynamic response. This creates a complex ageing landscape which due to interactions with cell design and usage conditions will manifest different degradation symptoms in each cell. The degradation symptoms in each cell, deriving each from multiple ageing mechanisms, cannot always be correlated, and therefore require their own metrics for monitoring and predicting. Decisions in how the cell is designed and used are not always clear, requiring compromise and consideration of target application. As an example, electrode surface area is a compromise between energy density (high volume) and power density (high surface area) but when considering ageing, it is also a direct compromise between SEI layer formation and lithium plating susceptibility. Cell temperature itself is also an important consideration. In

general, higher temperatures promote accelerated ageing through accelerated chemical reactions of both electrodes. Low temperature however presents its own challenges, particularly during charging. For this reason, 10-35 °C is cited as ideal over a usage profile depending on the cell used^[20, 36-38] but this would be less for storage and likely to be higher during charging.

Developing Tools for Ageing Analysis

In previous sections, it was shown that ageing in cells gives a complex change in cell performance with a large amount of hidden states, each dependent on multiple factors. A problem such as this requires a range of different tools to be applied, combining testing and simulation to develop methods for powertrain design, BMS control and state estimation strategy development.

For modelling Li-Ion cells electrical behavior there are 3 main approaches: empirical, equivalent circuit, and physical^[39]. High level attributes of each is shown in Table 1. With enough test data, empirical models can give a good representation of the symptoms of cell degradation, particularly when dealing with simple metrics such as capacity fade and simple resistance increase, with some ability to estimate specific mechanisms through known equations^[40]. Where empirical models would not be suitable however, is when attempting to model complex physical behavior, or when separating multiple ageing symptoms. Physical models are more suitable for this, based on fundamental chemical principles^[41-44] and extended to incorporate various ageing mechanisms^[13, 45]. These models are suitable if a good detail of knowledge about cell internal chemistry and construction is known, as they can be very powerful optimization and prediction tools. Without this information however, they do not perform, making them difficult to adapt to different cells particularly when considering degradation, although work is being done on solving this problem^[46]. They are also very computationally expensive and could be more in-depth than is required for typical control and system optimization

Table 1 High level comparison of modelling approaches

Modelling Approach	Empirical	Equivalent Circuit	Physical
Testing Requirements	High	High	Medium
Ageing Insight	Low	Medium-High	High
Implementation Complexity	Low	Medium	Medium
Cell Information Requirements	Low	Low	High
Computational Requirements	Low	Low	High
Transfer to new cell design	Low	Medium-High	Medium

problems, being more suited to cell design and development. Equivalent circuit models give intermediate levels of practicality and information. If designed correctly, elements in the circuit can be linked to physical behavior and more complex aspects such as cell internal states can be represented practically^[47]. These models can also be implemented in simple environments, and easily populated, making them suitable when versatile platforms are required to model performance and degradation across a range of cells.

Testing and data analysis methods must backup the chosen model platform. With section II showing usage factors impact not just the rate of degradation but its cause, it is important to get a test matrix range that covers all important degradation mechanisms and can allow for isolation and analysis of them. Bearing in mind the higher order and strong interaction effects between parameters^[48] a factorial approach becomes preferred, in particular considering temperature, SoC window and charge current. It is also important to consider the complexity of ageing symptoms and develop reference performance tests that capture the more complex aspects, such as relaxation time and changes in individual impedance components as well as the influence of SoC and temperature in this. Accelerated ageing experiments should be performed with caution and limitations should be considered e.g. high temperature cycling will accelerate ageing, but may also change the profile and underlying causes, making it less representative of real automotive usage.

For ageing informed Battery-cell control, it is important to maintain current limits and adjust algorithms for estimating the available energy and power. As confidence is required in algorithms before they are implemented on-board, effective testing and accurate modelling approaches are a necessary pre-requisite. It is important to estimate changes in cell capability in succinct ways that are easy to calculate using low processor power, and do not interfere with vehicle usability. Reduced equivalent circuit models lend themselves to this purpose, as do methods that can infer changes directly from voltage profiles such as Incremental Capacity Analysis^[49] and time domain relaxation analysis. It is necessary to have separate analysis methods at least for capacity and impedance, and possibly separation further for individual impedance components.

With the development of ageing understanding, evolving of chemistry and improvement in on-board control, the scope for Li-Ion cell degradation solution tools is evolving. In the short-medium term, the main trends in Li-Ion cells is high Nickel content NMC 811 cathodes, and incorporation of silicon doping in anodes^[50]. NMC 811

cells, due to their high nickel content, have more severe issues with cathode oxidization and transition metal dissolution than previously, which mean more cathode degradation needs to be considered. Silicon anodes bring about larger volume change than currently used graphite, leading to more damage of the electrode structure. Both electrode changes expand the focus of which ageing models need to consider. New cell electrolytes, such as solid-state, will bring a step change in degradation behavior, for example with solid state interfacial surface contact degradation between the electrodes and electrolyte can be dominant. To anticipate this, techniques must be sufficiently versatile to adjust, and the key degradation mechanisms of each new chemistry must be understood. Because of this, when developing both modelling and control algorithms, focus should be on making the tools adaptive, versatile and importantly predictive.

Machine learning tools have been adapted to predict key battery degradation states^[51] and could aid in accurate SoH estimations. These tools must be used with caution however, as it is difficult to ensure their robustness and consistency. Their ‘black box’ nature also means that while they may be good at deriving performance changes and ageing symptoms, they may not reveal to the system the underlying ageing mechanisms. This creates limitations in situations where knowledge of ageing mechanisms could be used to improve longevity i.e. intelligent control strategies. It is important to use practical methods that also identify the actual root causes of ageing, and intelligently react the control system operation to specifically mitigate these. For this reason, black box tools must be integrated carefully as part of a larger system combined with chemically representative models. Significant progress should be made on making models that illuminate specific changes in battery cell behavior yet still be practical enough to use in optimization strategies or even on-board so that they can be paired with automatic parameterization and integration strategies. To identify the underlying ageing mechanisms, all symptoms of behavioral change must be observed and combined to isolate the contribution of each ageing mechanism, using a variety of strategies including differential voltage methods, relaxation curve analysis, cell heating signatures, coulombic efficiency and capacity analysis. This information can then be analyzed to correlate with ageing mechanisms matching the observed behavioral changes, subsequently adapting the strategy to avoid certain ageing mechanisms e.g. reducing low temperature charging when lithium deposition is identified as dominant. This would allow for BMS that were originally designed identical, to become individually adapted based on the unique usage profile and subsequent degradation of each specific pack. For this approach to be feasible, it must first be correlated

with a high level of ageing information before being employed online. This requires the employment of a variety of techniques for enough validation information. As the on-board algorithms are approximating chemical changes in cell behavior, verifying through conventional electrical cycling is not sufficient. Cell dismantling and chemical analysis techniques such as Raman Spectroscopy, Scanning Electron Microscopy and X-Ray Diffraction are essential to illuminate the physical changes occurring in different parts of the cell, which can quantify the real physical/chemical ageing that has occurred to validate the adaptable approaches. A promising area of development is also in the form of in-operando degradation measurement techniques such as Ultrasound and Computed Tomography^[52-56] that allow observation of cell chemical and thermal behavior in real time. This will allow for additional information to be gathered that can get the level of detail required for developing informed and verified models and algorithms. It will also give opportunity to develop strategies for correlation of observable on-board measurements with internal chemical features, removing the reliance on constructed states to estimate behavior.

The evolution of the industry must also be anticipated with developing ageing tools. With increased original range, automakers are expanding their allowable degradation rate to allow battery packs usable down to 70% of original capacity. In addition to this, second life applications are in growing demand for used battery packs. Considering this, degradation tools must consider a much deeper level of degradation going forward. For these tools to be effective, cells must be able to be categorized not just on capacity but matched on impedance and cell stoichiometry to ensure uniform performance through the next stage of cell lifetime. This also requires methods for quantifying cell degradation while being ignorant of usage history, which requires a different approach to on-board monitoring.

Conclusions

In this paper, the landscape of Li-Ion cell ageing was explored which considered the variety and nature of degradation mechanisms, and the tools required to incorporate this knowledge into system design and control optimization. Li-ion ageing is complex, nonlinear and has multiple dependencies on how a cell is designed and used. The ageing dominates from the anode, with SEI formation and lithium deposition, but there are several other contributing mechanisms, and new chemistry developments will further increase this. This ageing depends on many factors, but in particular electrode design and chemistry during manufacture, and temperature, SoC and charge

current during usage.

To fully characterize, predict and mitigate ageing, a set of tools is required considering the testing, analysis, modelling and control aspects of the system design. Testing must reflect the nonlinear relationships with usage conditions, and their effect to change the underlying causes, to make sure all key condition combinations are covered, as well as capturing the more complex aspects of cell behavior change. Accelerated ageing tests could be helpful, but the effect on the realism of results must be considered. Modelling must be a balance between practicality and insight, but importantly must be linked to the real underlying physical/chemical features of the cells to analyze their specific evolutions. Control algorithms must be effective using only the information available to them, using machine learning only if the concerns with that approach are addressed by the rest of the system. An intelligent approach however has promise for developing adaptable BMS that can tune control behavior based on identification of ageing mechanisms. If combined with appropriate internal cell measurements and using chemical/physical analysis of aged cells for technique validation, it could create very powerful algorithms. What is clear, is that these approaches must consider metrics for each of the multiple degradation systems and should be accurate even down to relatively high levels of degradation to meet market trends. There is also a growing demand for tools which can analyze and classify the health level of used cells, without knowledge of their prior usage.

* This content is based on our investigation at this publish unless otherwise stated.

References

- [1] European Commission, "Proposal for a Regulation of the European Parliament and of the Council: Setting emission performance standards for new passenger cars as part of the Community's integrated approach to reduce CO₂ emissions from light-duty vehicles," 2018.
- [2] European Commission, "A Roadmap for moving to a competitive low carbon economy in 2050," 2011.
- [3] J. Vetter *et al.*, "Ageing mechanisms in lithium-ion batteries," *J. Power Sources*, vol. 147, no. 1-2, pp. 269-281, 2005.
- [4] A. Barré, B. Deguilhem, S. Grolleau, M. Gérard, F. Suard, and D. Riu, "A review on lithium-ion battery ageing mechanisms and estimations for automotive applications," *J. Power Sources*, vol. 241, pp. 680-689, 2013.
- [5] P. Keil, S. F. Schuster, P. Keil, S. F. Schuster, C. Von Lüders, and H. Hesse, "Lifetime Analyses of Lithium-Ion EV Batteries," in *3rd Electromobility Challenging Issues conference (ECI)*, 2015, no. December.
- [6] J. Remmlinger, S. Tippmann, M. Buchholz, and K. Dietmayer, "Low-temperature charging of lithium-ion cells Part II: Model reduction and application," *J. Power Sources*, vol. 254, pp. 268-276, 2014.
- [7] S. Gantenbein, M. Weiss, and E. Ivers-ti, "Impedance based time-domain modeling of lithium-ion batteries: Part I," *J. Power Sources*, vol. 379, no. September 2017, pp. 317-327, 2018.
- [8] M. Dubarry, C. Truchot, and B. Y. Liaw, "Synthesize battery degradation modes via a diagnostic and prognostic model," *J. Power Sources*, vol. 219, pp. 204-216, 2012.
- [9] C. Lin, A. Tang, H. Mu, W. Wang, and C. Wang, "Aging Mechanisms of Electrode Materials in Lithium-Ion Batteries for Electric Vehicles," *J. Chem.*, vol. 2015, 2015.
- [10] R. S. M Broussely, S Herreyre, P Biensan, P Kaszlejna, K Nechev, "Aging mechanism in Li ion cells and calendar life predictions," *J. Power Sources*, vol. 97-98, pp. 13-21, 2001.
- [11] S. Malmgren *et al.*, "Comparing anode and cathode electrode / electrolyte interface composition and morphology using soft and hard X-ray photoelectron spectroscopy," *Electrochim. Acta*, vol. 97, pp. 23-32, 2013.
- [12] J. Yan, J. Zhang, Y. Su, X. Zhang, and B. Xia, "A novel perspective on the formation of the solid electrolyte interphase on the graphite electrode for lithium-ion batteries," *Electrochim. Acta*, vol. 55, pp. 1785-1794, 2010.
- [13] H. J. Ploehn, P. Ramadass, and R. E. White, "Solvent Diffusion Model for Aging of Lithium-Ion Battery Cells," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 151, no. 3, p. A456, 2004.
- [14] P. Keil, S. F. Schuster, J. Travi, A. Hauser, R. C. Karl, and A. Jossen, "Calendar Aging of Lithium-Ion Batteries I. Impact of the Graphite Anode on Capacity Fade," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 163, no. 9, pp. 1872-1880, 2016.
- [15] R. B. Wright *et al.*, "Calendar- and cycle-life studies of advanced technology development program generation 1 lithium-ion batteries," *J. Power Sources*, vol. 110, pp. 445-470, 2002.
- [16] D. Wang, S. Saxena, J. Coignard, and E. A. Iosifidou, "Quantifying Electric Vehicle Battery Degradation From Driving vs. V2G Services," in *Power and Energy Society General Meeting (PESGM)*, 2016.
- [17] V. Agubra and J. Fergus, "Lithium ion battery anode aging mechanisms," *Materials (Basel)*, vol. 6, no. 4, pp. 1310-1325, 2013.
- [18] T. R. Jow, M. B. Marx, and J. L. Allen, "Distinguishing Li + Charge Transfer Kinetics at NCA / Electrolyte and Graphite / Electrolyte Interfaces, and NCA / Electrolyte and LFP / Electrolyte Interfaces in Li-Ion Cells," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 159, no. 5, pp. 604-612, 2012.
- [19] M. Kassem, J. Bernard, R. Revel, S. Péliissier, F. Duclaud, and C. Delacourt, "Calendar aging of a graphite/LiFePO₄ cell," *J. Power Sources*, vol. 208, pp. 296-305, 2012.
- [20] T. Waldmann, M. Wilka, M. Kasper, M. Fleischhammer, and M. Wohlfahrt-Mehrens, "Temperature dependent ageing mechanisms in Lithium-ion batteries - A Post-Mortem study," *J. Power Sources*, vol. 262, pp. 129-135, 2014.
- [21] K. Kumaresan, Q. Guo, P. Ramadass, and R. E. White, "Cycle life performance of lithium-ion pouch cells," *J. Power Sources*, vol. 158, no. August 2005, pp. 679-688, 2006.
- [22] C. P. Sandhya, B. John, and C. Gouri, "Lithium titanate as anode material for lithium-ion cells: A review," *Ionics (Kiel)*, vol. 20, no. 5, pp. 601-620, 2014.
- [23] J. Jaguemont, L. Boulon, and Y. Dubé, "A comprehensive review of lithium-ion batteries used in hybrid and electric vehicles at cold temperatures," *Appl. Energy*, vol. 164, pp. 99-114, 2016.
- [24] C. Materials, F. E. Vehicles, and E. S. Systems, "Cathode Materials for Future Electric Vehicles and Energy Storage Systems," 2017.
- [25] Z. Li, J. Huang, B. Yann, V. Metzler, and J. Zhang, "A review of lithium deposition in lithium-ion and lithium metal secondary batteries," *J. Power Sources*, vol. 254, pp. 168-182, 2014.
- [26] M. Broussely *et al.*, "Main aging mechanisms in Li ion batteries," *J. Power Sources*, vol. 146, no. 1-2, pp. 90-96, 2005.
- [27] M. F. Hasan, C. Chen, C. E. Shaffer, and P. P. Mukherjee, "Analysis of the Implications of Rapid Charging on Lithium-Ion Battery Performance," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 162, no. 7, pp. 1382-1395, 2015.
- [28] P. protocols for lithium-ion batteries and their impact on cycle life - A. experimental study with different 18650 high-power cells Keil and A. Jossen, "Charging protocols for lithium-ion batteries and their impact on cycle life - An experimental study with different 18650 high-power cells," *J. Energy Storage*, vol. 6, pp. 125-141, 2016.
- [29] R. Hausbrand *et al.*, "Fundamental degradation mechanisms of layered oxide Li-ion battery cathode materials: Methodology, insights and novel approaches," *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 192, pp. 3-25, 2015.
- [30] M. Shirk and J. Wishart, "Effects of Electric Vehicle Fast Charging on Battery Life and Vehicle Performance," *SAE Int.*, 2015.
- [31] P. Liu *et al.*, "Aging Mechanisms of LiFePO₄ Batteries Deduced by Electrochemical and Structural Analyses," *J. Electr. Soc.*, vol. 157, pp. 499-507, 2010.
- [32] F. Schipper, E. M. Erickson, C. Erk, J. Shin, F. F. Chesneau, and D. Aurbach, "Review - Recent Advances and Remaining Challenges for Lithium I. Nickel-Rich, LiNi_xCo_yMn_zO₂," vol. 164, no. 1, pp. 6220-6228, 2017.
- [33] J. Kim, H. Lee, H. Cha, M. Yoon, and M. Park, "Prospect and Reality of Ni-Rich Cathode for Commercialization," vol. 1702028, pp. 1-25, 2018.
- [34] B. Markus, J. Haetge, F. M. Schappacher, and M. Winter, "Influence of temperature on the aging behavior of 18650-type lithium ion cells: A comprehensive approach combining electrochemical characterization and post-mortem analysis," vol. 342, pp. 88-97, 2017.
- [35] D. D. E. R. Wissenschaften and F. L. a. Mantia, "Characterization of Electrodes for Lithium-Ion Batteries through Electrochemical Impedance Spectroscopy and Mass Spectrometry," Università degli Studi di Palermo, 2008.
- [36] W. Prochazka, G. Pregartner, and M. Cifrain, "Design-of-Experiment and Statistical Modeling of a Large Scale Aging Experiment for Two Popular Lithium Ion Cell Chemistries," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 160, no. 8, 2013.
- [37] L. Su *et al.*, "Identifying main factors of capacity fading in lithium ion cells using orthogonal design of experiments," *Appl. Energy*, vol. 163, pp. 201-210, 2016.
- [38] P. Keil and A. Jossen, "Aging of Lithium-Ion Batteries in Electric Vehicles: Impact of Regenerative Braking," *EVS28 Int. Electr. Veh. Symp. Exhib.*, pp. 1-11, 2015.
- [39] R. Spotnitz, "Challenges for Battery Modeling," in *Advanced Automotive Battery Conference Europe 2016*, 2016.

- [40] P. Ma, S. Wang, L. Zhao, M. Pecht, Z. Su, and Z. Ye, "An improved exponential model for predicting the remaining useful life of lithium-ion batteries," in *2015 IEEE Conference on Prognostics and Health Management (PHM)*, 2015.
- [41] J. Christensen and J. Newman, "Cyclable Lithium and Capacity Loss in Li-Ion Cells," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 152, no. 4, p. A818, 2005.
- [42] N. Xue, "Design and Optimization of Lithium-Ion Batteries for Electric-Vehicle Applications," University of Michigan, 2014.
- [43] A. Tourani, "Investigation into operating temperature effect on the performance of high capacity lithium-ion cells," Coventry University, 2013.
- [44] J. Christensen, "Modeling Diffusion-Induced Stress in Li-Ion Cells with Porous Electrodes," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 157, no. 3, p. A366, 2010.
- [45] M. Safari and C. Delacourt, "Modeling of a Commercial Graphite/LiFePO₄ Cell," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 158, no. 10, pp. A562-A571, 2011.
- [46] N. T. Tran, M. Vilathgamuwa, T. Farrell, S. S. Choi, Y. Li, and J. Teague, "A Padé Approximate Model of Lithium Ion Batteries," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 165, no. 7, pp. A1409-A1421, 2018.
- [47] R. Stocker, N. Lophitis, A. Mumtaz, U. Kingdom, U. Kingdom, and U. Kingdom, "Development and Verification of a Distributed Electro-Thermal Li-Ion Cell Model," *44th Annu. Conf. IEEE Ind. Electron. Soc.*, vol. 1, pp. 2044-2049, 2018.
- [48] R. Stocker, A. Mumtaz, N. Lophitis, U. Kingdom, U. Kingdom, and U. Kingdom, "Design-of-Experiments Analysis of Li-Ion Cell Capacity Fading in High Temperature Automotive Conditions," in *Electric vehicles international conference and show*, 2019, pp. 2-7.
- [49] M. Dubarry, C. Truchot, and B. Y. Liaw, "Cell degradation in commercial LiFePO₄ cells with high-power and high-energy designs," *J. Power Sources*, vol. 258, pp. 408-419, 2014.
- [50] M. Ahmad, A. Mumtaz, M. Lane, E. Kendrick, and R. Silva, "Vertically Aligned Silicon Coated Carbon Nanotubes for Use in Lithium-Ion Cells," in *Advanced Energy Materials*, 2018.
- [51] S. Li, J. Li, H. He, and H. Wang, "Lithium-ion battery modeling based on Big Data," *Energy Procedia*, vol. 159, pp. 168-173, 2019.
- [52] D. P. Finegan *et al.*, "In-operando high-speed tomography of lithium-ion batteries during thermal runaway," *Nat. Commun.*, vol. 6, pp. 1-10, 2015.
- [53] D. P. Finegan *et al.*, "Quantifying Bulk Electrode Strain and Material Displacement within Lithium Batteries via High-Speed Operando Tomography and Digital Volume Correlation," vol. C, pp. 1-11, 2016.
- [54] J. B. Robinson, M. Maier, G. Alster, T. Compton, D. J. L. Brett, and P. R. Shearing, "Spatially resolved ultrasound diagnostics of Li-ion battery electrodes," *Phys. Chem. Chem. Phys.*, vol. 21, no. 12, pp. 6354-6361, 2019.
- [55] K. M. O. Jensen *et al.*, "X-Ray Diffraction Computed Tomography for Structural Analysis of Electrode Materials in Batteries," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 162, no. 7, pp. A1310-A1314, 2015.
- [56] S. Komini Babu, A. I. Mohamed, J. F. Whitacre, and S. Litster, "Multiple imaging mode X-ray computed tomography for distinguishing active and inactive phases in lithium-ion battery cathodes," *J. Power Sources*, vol. 283, pp. 314-319, 2015.



Richard STOCKER

リチャード ストッカー

Horizon Scanning
HORIBA MIRA Ltd.



Puneet MATHUR

プニート マサー

Energy Efficiency Group
HORIBA MIRA Ltd.



Asim MUMTAZ

アシム マムタズ

Lecturer & Academic Manager
Stephenson Institute for Renewable Energy
University of Liverpool
Ph.D.



Neophytos LOPHITIS

ネオフィトズ ロフィティズ

Assistant Professor
Institute for Future Transport and Cities
Coventry University
Ph.D.

分光技術を用いたリチウムイオン電池の分析評価

Analytical Evaluation of a Lithium Ion Battery Using Spectroscopic Technology

廣瀬 潤

Jun HIROSE

堀場製作所では、ラマン分光、グロー放電発光分光、赤外線分光、蛍光分光などの分光分析技術を用いて、電池の内部で起こる材料レベルの状態や現象を解析するための分析装置や分析アプリケーションの開発を行っており、研究開発や品質管理の分野で広く使用されてきた。今後、特に、電池性能と安全性を両立しながら、電池を安定的かつ低コストで製造するためには、より厳密な製造プロセスの品質管理が必要になり、そのための分析技術が益々重要になっている。本稿では、HORIBAの分光分析技術を用いた電池製造プロセスにおける評価事例を解説する。

HORIBA has been developed analytical instruments and applications for investigating a battery internal conditions and reactions with material level by using spectroscopic technology such as Raman spectroscopy, Glow discharge emission spectroscopy, infrared spectroscopy, and fluorescence spectroscopy. These instruments and technologies are widely used in R&D and quality control fields. In the near future, stricter quality control should be required for manufacturing batteries with stable supply and low cost to do both performance and safety at the same time, then analytical technologies should become more important. In this paper, I will introduce HORIBA spectroscopic analytical technologies and applications for battery manufacturing process.

はじめに

リチウムイオン電池は、軽くてエネルギー密度が高く、充放電サイクルによる劣化も比較的小さいため、電気自動車の動力源としても広く普及している。そのための研究開発も精力的に行われているが、高い製造コストをいかに下げるかが課題となっている。特に、電池性能と安全性を両立しながら、全固体電池やハイニッケル正極材料などを用いた電池を安定的かつ低コストで製造するためには、水分管理やコンタミ(異物混入)対策、均一性評価など、従来の製造プロセスでは対応が困難な品質管理が求められる。本稿では、分光分析技術を用いたリチウムイオン電池の製造プロセスモニタリング技術として、ラマン分光によるスラリー分散性評価、高濃度状態のスラリー粒度分布評価、近赤外吸収分光によるN-メチル-ピロリドン(NMP)・電解液中の水分計測、三次元蛍光分光による電解液状態評価の事例を紹介する。

リチウムイオン電池製造プロセスにおける分析評価

リチウムイオン電池製造プロセスにおける課題

リチウムイオン電池の電極製造プロセスでは、原料粉体は、水やNMP等の媒液中に粉体を分散させたスラリーの状態で見られる。調製されたスラリーは集電体への塗布後、溶媒を除去する工程を経て電極となる。電極製造プロセスでスラリーを用いることには多くのメリットがある一方で、最終製品の電池特性は、電池製造プロセスの出発点であるスラリーの特性、特に分散・凝集状態が影響を及ぼすため、その評価は非常に重要である。スラリーの分散性評価は、粘度測定や沈降試験など様々な手法が提案されているが、それぞれに一長一短があり、技術者の経験と勘に頼っている場合が多い。一般的に、粒子濃度が同じなら見掛け粘度の低いスラリーで緻密な電極合剤が得られるとされているが、その結果がスラリーの分散性や充填性と一致しないことも多い^[1]。本項では、簡便で直接的にスラリーの分散性評価が可能な方法として、ラマン分光法によるスラリー分散性評価と高濃度セルを用いた粒子径分布測定について述べる。

ラマン分光によるスラリー分散性評価

顕微ラマン分光法は、顕微鏡下で物質の分子構造や組成情報を分析する装置である。顕微鏡の観察部に特定波長のレーザー光が照射されると、励起光（レーザー光）と試料の相互作用によってラマン散乱と呼ばれる非弾性散乱が起こり、その部位の分子構造に固有のラマンスペクトルが得られる。リチウムイオン電池においても、電極の構成材料や状態によって分子構造が異なるため、ラマンスペクトルを取得することによって、照射部位の物質を見分けることができる^[2]。また、ラマンマッピングを行えば、電極中の活物質やバインダー、導電助剤などの分布状態を観察することができる。

今回、正極スラリーの混練条件を検討するために、3元系リチウム金属酸化物(NMC：ニッケル・マンガン・コバルト)／アセチレンブラック(AB)／ポリフッ化ビニリデン(PVDF)=96/2/2の配合試料を、短時間攪拌した試料A(粘度：18000 mPa・s)と通常攪拌した試料B(粘度：6500 mPa・s)を準備し、堀場製作所製 顕微レーザーラマン分

光測定装置LabRAM HR-Evolution (Figure 1)を用いて、Table 1に示す分析条件でラマンマッピングを測定した。測定試料のスラリーは、スライドガラス上に数滴とり、カバーガラスで蓋をしテープで固定した。

Figure 2は各スラリーのラマン分光分析結果であり、それぞれ、分析領域の光学顕微鏡像とラマンマッピング像である。ここで、ラマンマッピング像の色は、スラリー構成材料の原料スペクトルに基づいて、多変量解析により各成分の重み付けがされており、青色の領域には活物質の3元系リチウム金属酸化物(NMC)、赤色は導電助剤のアセチレンブラック(AB)、緑色はNMPに溶解したポリフッ化ビニリデン(PVDF)が存在していることを示している。スラリーAは固形分のNMC(青)やAB(赤)がラマンマッピング像の大部分を占めており、PVDF(緑)が馴染んでいない様子が確認できる。一方、スラリーBではPVDF(緑)が固形分に馴染んでNMCの周りにコーティングされているため、ラマンマッピング像の大部分をPVDF(緑)が占めている。また、電極合剤の導電ネットワーク形成に重要な役割を果たすABがNMCと密着して存在している状態も確認できる。



Figure 1 Confocal Raman Microscope LabRAM HR-Evolution

Table 1 Analysis condition of Raman spectroscopy

Laser wavelength	532 nm
Laser power	0.6 mW
Mapping area	100×100 μm
Step size	1.5 μm
Mapping resolution	68×68

高濃度状態のスラリー粒度分布評価

通常、レーザー回折／散乱式の粒子径分布測定装置でスラリーを測定する場合には、試料を十分に希釈する必要がある。特に原液が高濃度の材料の場合、高濃度での分散状態を把握したいにも関わらず、測定時には大きく希釈を行う必要があり、希釈による分散状態の変化が懸念されていた。高濃度測定セル(Figure 3)は、これまで試料濃度で調節していた透過率を、光路長を調整することで、様々な濃度での測定を可能にしたもので、電池材料のスラリーやインクなど幅広い分野で研究開発や品質管理の目的で使用できる。

堀場製作所製 粒子径分布測定装置LA-960(Figure 4)は、セル中の広い範囲の粒子からの信号を取得するように光学系が設計されており、高濃度測定セルのような固定された試料の測定でも平均的な粒子径分布を得やすい特徴があ

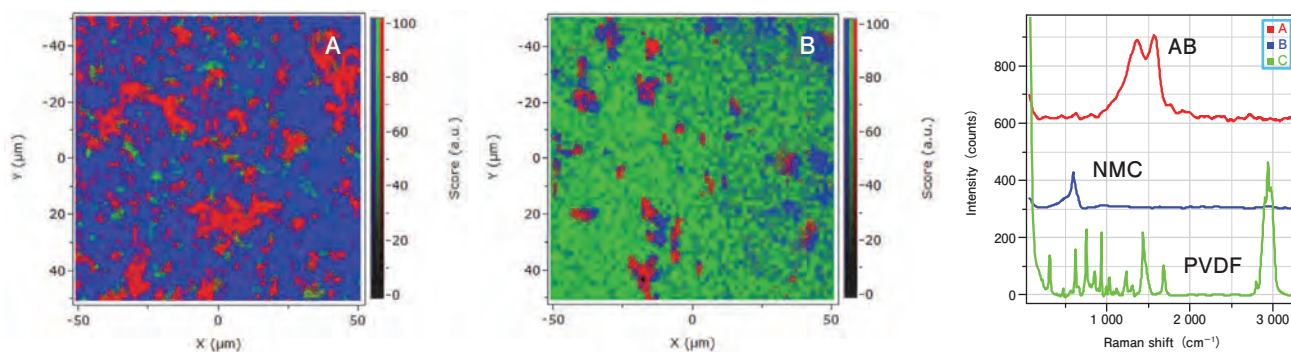


Figure 2 Raman mapping image and spectra of battery anode slurry material



Figure 3 High concentration cell



Figure 4 LA-960 Laser Particle Size Analyzer

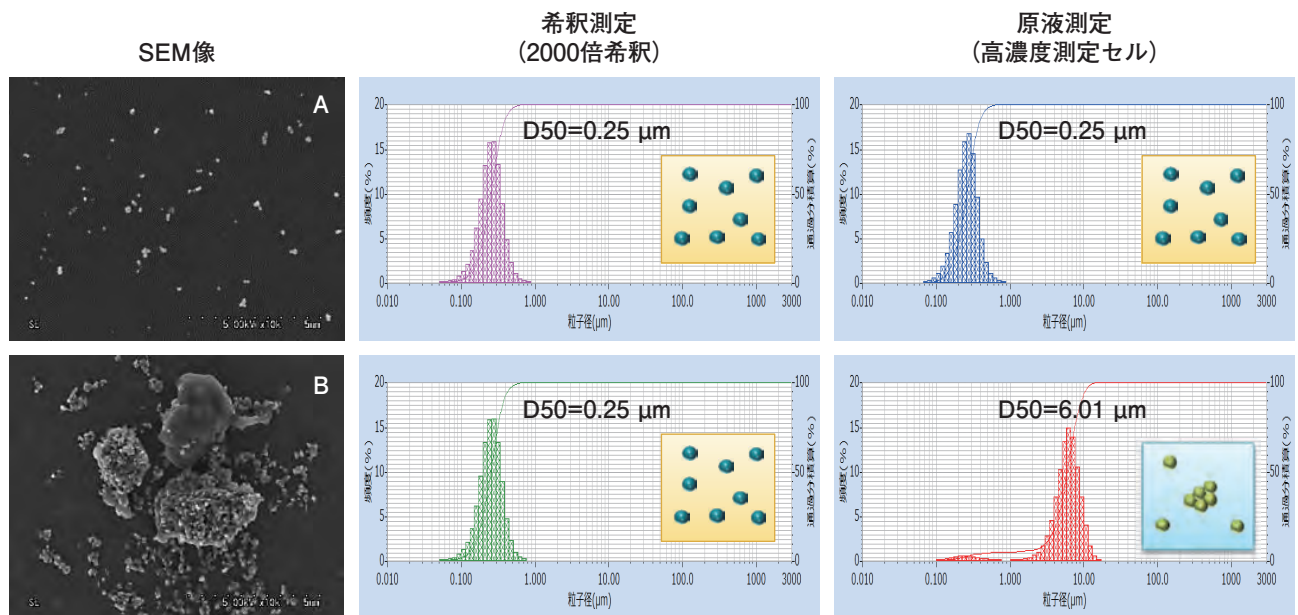


Figure 5 Particle size analysis example of carbon ink using the high concentration cell

る^[3]。

本項では、高濃度測定セル(10 μmスペーサー)を用いた実測例(Figure 5)を紹介する。試料は導電剤にも用いられるカーボンインクであり、SEM像で示すように分散しているものが試料A、凝集物があるものが試料Bである。希釈しての測定結果では、試料A、B共に、ほぼ同じ粒子径分布結果となっている。これは、試料Bに含まれている凝集物が、希釈により一次粒子に分散されたものと考えられる。一方、高濃度状態(希釈なしの原液状態)での測定結果では、試料Bの凝集物が測定されている。また、試料Aは高濃度で測定をしても、希釈した場合の粒子径と同等の粒子径測定結果が得られた。高濃度測定セルとレーザー回折/散乱式の粒子径分布測定装置 LA-960の組み合わせで、これまで見ることができなかった状態での測定も可能である。

近赤外吸収分光によるNMP・電解液中の水分計測 NMP中の水分計測

リチウムイオン電池製造工程では、NMPが大量に使用されている。NMPは溶剤であり、スラリーを集電体に塗布した後は蒸発、排気される。ただし、そのまま放出すると大気汚染の原因になるため、吸着装置などにより排ガス中のNMPを除去している。吸着装置にて回収されたNMPは、大気中の水分も吸着しているため、再利用するためには脱水・精製処理を行う必要がある。様々なNMPリサイクルの取り組みがなされている。NMP中の水分の除去技術には、モレキュラーシーブ吸着法や加熱蒸留法、真空蒸発法などがあるが、どの方法を用いるにしても、NMP中の水分除去ができていないか水分計測し管理する必要がある。NMP中の水分濃度測定法としては、カールフィッシャー法(KF法)が一般的であるが、測定に手間と時間がかかり、測定のばらつきも大きいため、リアルタイムにインライン計測ができる手法が望まれている。



Figure 6 Fiber Optic Type Chemical Concentration Monitor CS-600F

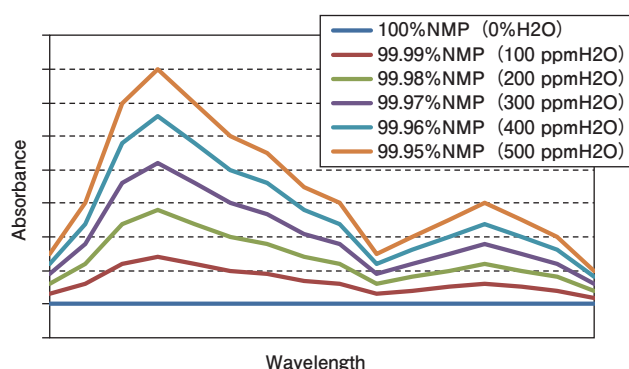


Figure 7 Near infrared absorption spectra of water

近赤外吸収分光法(NIR法)は、インラインのNMP中の水分計測手法として注目されている。本法はLambert-Beerの法則を基本原理としており、各波長での光強度を測定することで吸光度を算出し、あらかじめ設定された吸光係数およびセル長に基づいて濃度を算出する。実際の測定系では入射光を直接測定することが難しいため、入射光の代わりにリファレンス光強度を測定している。NIR領域にはO-H結合の吸収領域があり、H₂Oの吸収もある。堀場製作所製薬液濃度計CS-600F (Figure 6)は、独自設計のツェルニーター型分光器を搭載しており、マルチチャンネルディテクタにおいて複数波長点での光量を同時に測定している。これにより、移動平均処理などを含めても測定間隔約0.5-3秒という高速応答を実現している。また分光部に駆動部がないため再現性よく測定できる^[4]。

Figure 7は、堀場製作所製薬液濃度計CS-600F (Figure 6)を用いて測定したNMPのNIR領域の吸収スペクトルであり、NMP中の水分を0 ppmから100 ppm刻みで500 ppmまで変化させている。本装置にて、NMP中の水分濃度の変化を明確にモニタリングできていることがわかる。また、Figure 8は、CS-600Fを用いたNIR法とKF法による水分濃度測定値の相関を示したものであるが、非常によい直線性を示しており、NIR法はNMPリサイクル工程のインライン水分計測法として有力な手法であるといえる。

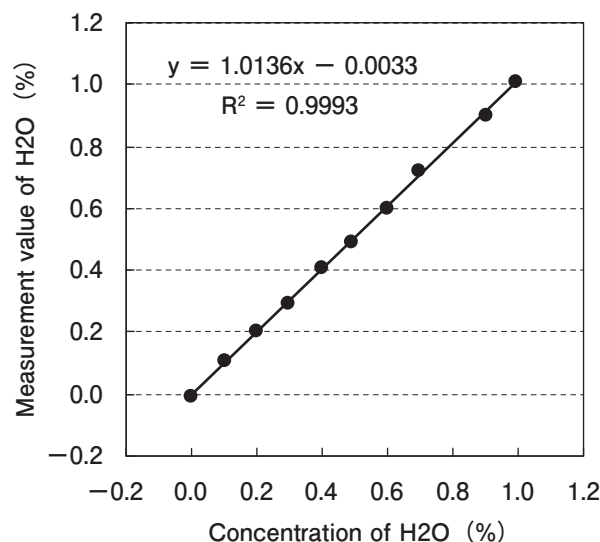


Figure 8 Correlation between near infrared method (CS-600F) and Karl Fischer method on moisture content measurement in NMP (N-methyl-pyrrolidone)

電解液中の水分計測

リチウムイオン電池などに用いられる電解液は、水分の混入や比較的高温な環境によって変質することが知られており、生成した物質による安全性や電池性能への影響が懸念されている^[5]。そのため、電解液の状態変化を事前に検出することは、電池品質向上の面で非常に重要といえる。

ここでは、NMP中の水分計測と同様に、堀場製作所製薬液濃度計CS-600F (Figure 6)による電解液中の水分計測について、エチレンカーボネート(EC)/ジエチルカーボネート(DEC)3:7液で作成した検量線を用いて、試料1:1M LiPF₆ EC/DEC 3:7と試料2:1M LiPF₆ EC/DEC 3:7 1wt% VCの電解液を測定した事例を紹介する。検量線には、六フッ化リン酸リチウム(LiPF₆)及び炭酸ビニレン(VC)を含めていなかったが、指示値にスパン補正とゼロ点補正を適用することで、KF法により計測した水分量と非常に良い相関が得られている。Figure 9は、試料1及び試料2のNIR法(CS-600F)による測定値とKF法による測定値の相関を示しているが、NIR法(CS-600F)でも120 ppmまでの水分濃度において、それぞれ3 ppm及び9 ppmの誤差で測定可能であった。

三次元蛍光分光による電解液状態評価

電解液成分の分析は、LC/MSやGC/MSなどの手法が用いられてきたが、試料分離・前処理操作や複雑なデータ処理が必要であるため、迅速簡便な測定手法が望まれている。

励起波長を走査しながら発光スペクトルを測定する三次元蛍光測定(Excitation Emission Matrix: EEM)は、広範囲に渡る複数の励起・発光プロファイルを迅速かつ非破壊・非接触に取得できる手法で、品質管理への応用が期待されている。

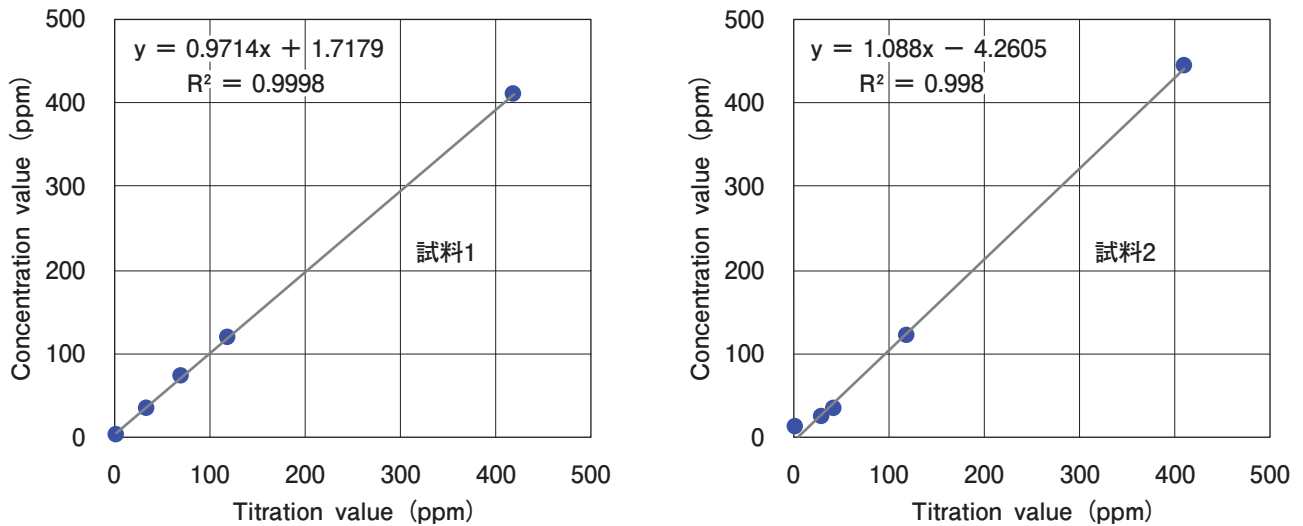


Figure 9 Correlation between near infrared method (CS-600F) and Karl Fischer method on moisture content measurement of electrolyte

ここでは、堀場製作所製 三次元蛍光測定装置Aqualog (Figure 10)を用いて、長期保存により劣化が予想される電解液を対象に、EEM測定と多変量解析のひとつであるParallel factor (PARAFAC)解析を用いた非破壊の電解液状態評価について述べる^[6]。

Figure 11に、保存条件の異なる1M LiPF₆、EC/ジメチルカーボネート (DMC)/エチルメチルカーボネート (EMC) (3:3:4 v/v%)のEEM測定結果を示す。発光強度を同一次元で比較するため、別途測定した励起350 nm照射時の水のラマン散乱強度で規格化している。室温25℃で測定した電解液試料のEEMでは、異なる励起・発光波長に複数の発光ピークが見られた (Figure 11a)。これは、本電解液試料に複数の蛍光物質を含有していることを示唆する。この電解液試料を70℃にて45時間保持した場合、励起350-550 nm、発光400-600 nm付近のEEM形状が大きく変化するとともに、励起260 nm、発光275 nm付近に新たな発光ピークが見られた (Figure 11b)。比較的高温な環境では、電解液中に成分変化が見られることが知られており、EEM測定を

用いて、高温環境下で変化した電解液成分をモニタリングすることが期待できる。

Figure 12は、室温25℃と70℃にて45時間保持した試料において、EEM測定で見られた発光ピークをPARAFAC解析により5成分に分類し、各成分のPARAFACスコアの経時変化を比較したものである。成分ごとに異なるスコア値変化が見られており、特定の発光成分を詳細に解析することで、電解液の熱分解による発光成分への影響評価など、様々な要因による電解液状態変化を個別にモニタリングできる可能性がある。

おわりに

リチウムイオン電池の製造プロセスにおける品質管理に有用な分光分析技術について、スラリーや電解液などのモニタリング技術を取り上げ紹介したが、これらの分析評価と電池特性評価との相関から製造プロセスの最適化が行われている。また、最終製品である電池の構成部材の評価や劣



Figure 10 Steady-State compact benchtop fluorometer

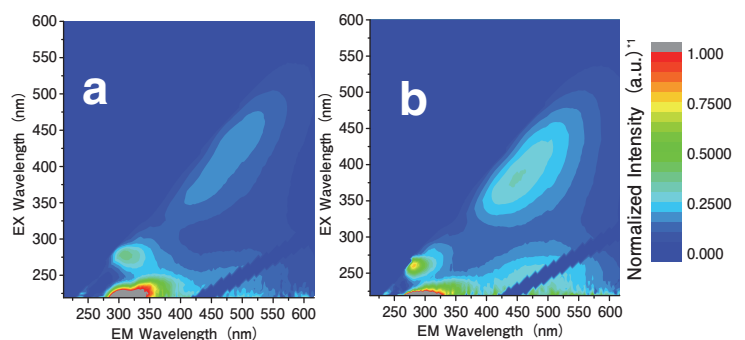


Figure 11 EEM measurement result of 1M LiPF₆ in EC/DMC/EMC (3:3:4 v/v%) at 25°C (a), and 75°C kept for 45 hours (b)
*1 To normalize intensity, all intensity values were divided with water Raman scattering value at Em 397 nm for 350 nm excitation.

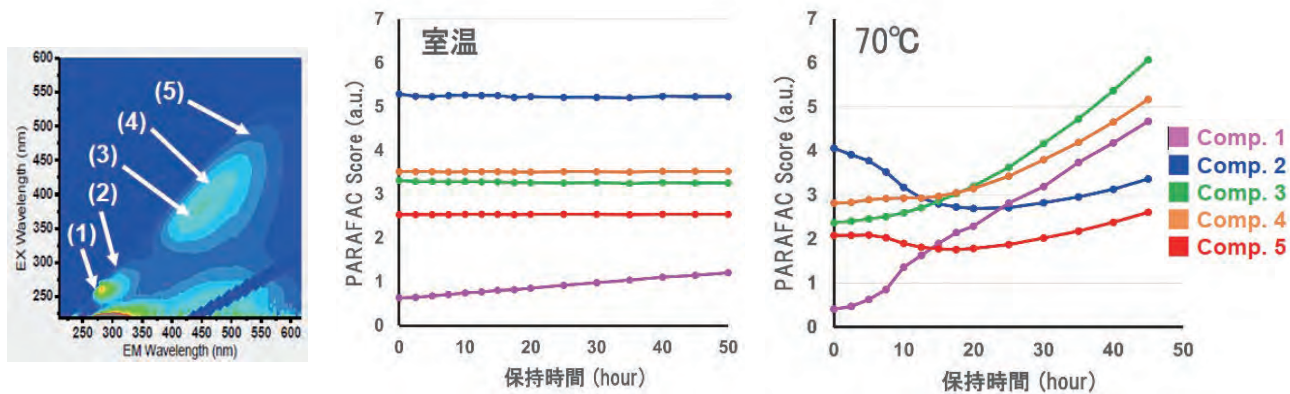


Figure 12 EEM position of five ingredients with PARAFAC analysis, and their score change-with-time kept at 70°C

化した電池の要因解析にも分光分析技術は活用されている。紙面の都合上詳細には説明しないが、電極の深さ方向の元素分布、セパレーター表面のコーティングの元素分布などにグロー放電発光分光分析が、活物質の結晶性評価や構造解析などにラマン分光分析が活用されている。今後も、様々な分析評価技術が駆使され、電池材料の研究開発や品質管理に大きく貢献できるものと考えている。

* 本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] 佐藤根大士, J. Jpn. Soc. Colour Mater., 87(7), 240-244(2014)
- [2] 沼田朋子, 奥野義人, 中田靖, 中庸行 HORIBA Technical Reports Readout, No.45, 24-34(2015)
- [3] 山口哲司 HORIBA Technical Reports Readout, No.45, 35-39(2015)
- [4] 中井陽子 HORIBA Technical Reports Readout, No.47, 47-51(2016)
- [5] 川村哲也, 江頭港, 園田高明, 岡田重人, 九州大学機能物質科学研究所報告, 16, 7-11(2002)
- [6] 北川雄一, 廣瀬潤, 田中悟, 第59回電池討論会講演要旨集 1A25, 18(2018)



廣瀬 潤

Jun HIROSE

株式会社 堀場製作所 開発本部 システムソリューション部 マネージャー
博士(医学)
Manager, System Solution Dept.
Research & Development Division, HORIBA, Ltd.
Ph.D.

Introduction of HORIBA FuelCon GmbH Evaluation Technologies for Battery and Fuel Cell

HORIBA FuelCon社の紹介

バッテリーと燃料電池の評価技術

2050年までにCO₂(二酸化炭素)排出量を大幅削減するための国家や社会の動きやエネルギーセキュリティを背景に、自動車のエネルギー効率の飛躍的な向上や、太陽光や風力など再生可能エネルギーによる発電が再び着目されています。今、自動車産業は市場、技術、規制など多次元の変化を目の当たりにしています。電動車両の普及により将来全ての自動車にモーターとバッテリーが搭載されることは、新たな企業参入の機会を生みます。また、欧州の燃費規制や中国の新エネルギー車促進などの政策は、各国の取り組みとして自動車の電動化に向けた開発やハイブリッドや燃料電池を含む電動車両の普及を後押ししています。その結果、全体のバランスや最適化を進めるため、より多くの検証が必要となり、自動車会社の開発工数を大幅に肥大化させていく課題も顕在化してきました。HORIBA FuelCon GmbH(FuelCon)は、クリーンで高効率なエネルギー社会を目指し、業界のニーズをサポートしています。このセクションでは、FuelConが提供するバッテリーと燃料電池に関連する技術的な課題解決に向けたソリューションを紹介します。

Introduction

Due to the ongoing concern about the environment, the automotive industry is witnessing a multidimensional shift, focusing on three major challenge areas: Changing Market, Changing Technology and Changing Legislation. Addressing these challenges while keeping up with the decreasing development time demands an increasing amount of more complex and integrated, but at the same time efficient validation.

The whole industry is aligning itself to this major shift. Keeping with our culture of innovation and commitment to the environment we are supporting the industry needs in “Making the World Cleaner and More Efficient”. The changing market is driven by an increasing complexity and the need for faster development cycles.

These changes demand the industry to simultaneously work on multiple technologies, while increasing the need for a more complex but also more efficient validation. The automotive industry focuses a lot of effort onto the area of new propulsion technologies, especially on electrified solutions (xEV). Many of the necessary components currently lack the technological maturity and therefore require more validation. HORIBA FuelCon GmbH (FuelCon) is assisting them in overcoming the associated technical challenges through the application of our battery and fuel cell validation solutions.

This section introduces the battery and fuel cell verification solutions provided by FuelCon.

Yasunari HANAKI

花木 保成

Carsten Krüger

カーステン クルーガー



Figure1 Evaluator LT series

Evaluator LT for PEM*1 Fuel Cells

FuelCon's Evaluator LT test stations are proven solutions for our customers' specific requirements: long-term studies, performance tests, system qualification and material characterization. Our product line (Figure 1) ranges from test and diagnostic solutions for PEM and high temperature PEM single cells, components, stacks and systems to manufacturing equipment of PEM stacks.

*1: PEM: Polymer Electrolyte Membrane

The Evaluator LT test stations ensure efficient completion of automated test programs within a temperature range from -40°C up to 250°C (high temperature PEM) and a power range from 1 W up to 250+ kW. With several dynamic humidification options and system pressure levels they allow running any test program and load cycle characteristic for portable, stationary and mobile fuel cell applications. Their robust PLC system control guarantees the performance of life cycle tests, as well as a reproducible performance and the optimization of assembling processes - always with maximum safety for operators, laboratory and test item.

FuelCon exclusively focuses on test and diagnostic systems for fuel cells and energy converters. Particular internal processes and measures ensure that all your sensitive technical and commercial details are kept strictly confidential. Our TISAX certification guarantees maximum data security.

Evaluator HT for Solid Oxide Fuel Cell (SOFC)

FuelCon's Evaluator HT test stations are proven solutions for our customers' specific requirements: long-term studies, performance tests, system qualification and material characterization of SOFC single cells, components, stacks, hot boxes or complete systems. Our product line (Figure 2) ranges from test and diagnostic solutions to equipment for integrated manufacturing and quality management as well as sintering stations for assembling of SOFC stacks.

The Evaluator HT test stations ensure efficient operation of automated test programs and thermal cycles at temperatures up to 1,100°C. The systems can run in both fuel cell mode and electrolysis mode. Their robust PLC (Programmable Controller) system control guarantees the reproducible performance of life cycle tests as well as the optimization of assembling processes



Figure2 Evaluator HT series

- always with maximum safety for operators, laboratory and test item. For all Evaluator HT stations, proven furnace designs and various modules for reproducible, defined adjustment of single cells or stacks are available with various mixing options for the input gases to simulate any fuel cell scenario.

Classes

Different testing tasks require different testing systems. Therefore, FuelCon offers a complete product line of test system types designed to meet specific customer requirements.

FuelCon’s Evaluator C series on the one hand is specifically designed to characterize components such as interconnector plates, sealings, electrodes or membrane electrode assemblies (MEA: Membrane Electrode Assemblies), gas diffusion layers (GDL), bipolar plates, sealings, complete single cells.

The Evaluator S series on the other hand provides testing of stacks, hot boxes (for SOFC) and fuel cell systems.

End-of-Line (EOL) stations allow fast final testing in the production of stacks under fully reproducible gas compositions, temperatures, humidification as well as under precise electrical loading.

All stations are available to be upgraded for testing cells and stacks in electrolyzer mode simply adding some process parts and modifying the electronic load.

FuelCon’s sintering stations allow to produce stacks under fully reproducible gas compositions, temperature cycles as well as under precise mechanical compression.

Humidification Technologies

The humidification of the anode and cathode gas flows is an important duty in every fuel cell test station. It typically requires the highest effort among the process part of a test station and is the largest energy consumer within the station. Besides the process parts, the control system plays an important role to ensure a proper functionality.

Depending on the chosen humidification technology, FuelCon’s real-time control system guarantees a constant gas humidification within the specified flow

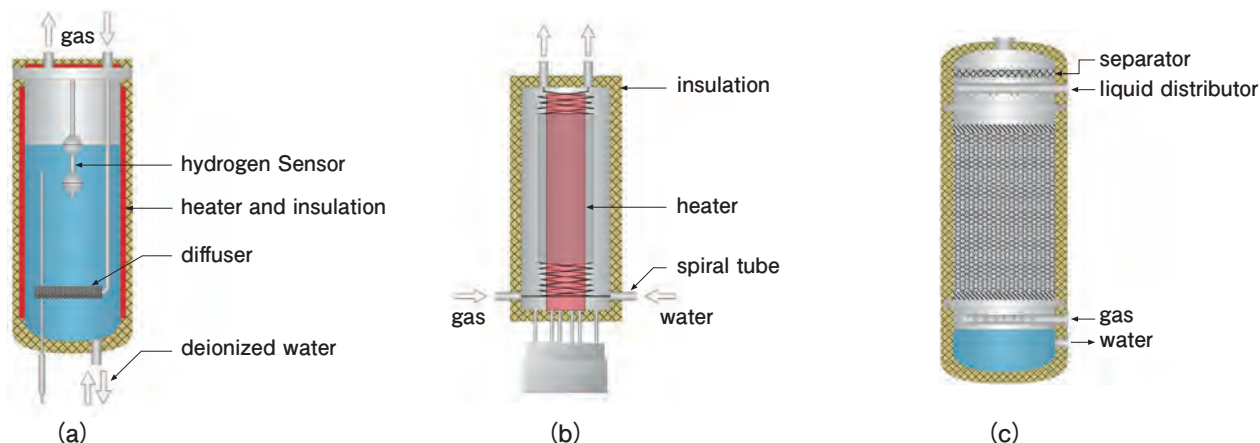


Figure 3 Humidification method;
 (a) bubbler method (dew point 25°C - 90°C, gas flow rate 0.1 - 200 NI/min, for stationary operation),
 (b) injection method (dew point -20°C - 150°C, gas flow rate 0.5 - 600 NI/min, for dynamic operation), and
 (c) shower method (dew point 25°C - 90°C, gas flow rate 200 - 15,000 NI/min, for dynamic operation).

temperature-pressure range of the test station. Especially during a dynamic operation, FuelCon's PLC based control system shows its strength developed over years at a large number of test stations. FuelCon supports customers to choose the right humidification system depending on your specific needs, in case of fuel cell technology, duty cycles, dynamic, accuracy and the characteristic flow pressure-temperature field.

The following technologies are available:

- Advanced Saturator: low to medium gas flow, stationary operation (Figure 3a)
- Direct Injection: medium to high gas flows, dynamic operation (Figure 3b)
- Counter-flow: high gas flow, dynamic or stationary operation(Figure 3c)

Each technology is equipped with dry gas bypasses and an automatic refill of de-ionized water. The operator can choose the desired physical property of the set point (dew point, relative humidity, water amount or steam / carbon ratio) by using the TestWork GUI.

Evaluator B for Batteries

The increased interest in electric mobility and energy storages results in a high demand for test engineering, for research and development as well as validation and qualification. For the development of powerful batteries and battery systems, recording characteristic curves, examining degradation, identifying the cycle stability, the SOC or the capacity are only some of the many necessary test tasks.

As an established manufacturer of automated test plants, HORIBA FuelCon offers, with the Evaluator B (Figure 4), a customer-specific concept that fulfills the ambitious demands of these applications delivering high precision and flexibility.

All Evaluator B systems possess a real-time level as well as a higher-level data management that is realized by means of a server-client architecture. The



Figure 4 Evaluator B

control is carried out through the user-friendly software TestWork. The open interface concept of the system furthermore enables simply integrating additional components as for instance CAN² bus interfaces, electronic control units, additional liquid cooling circuits, climate chambers or acquiring further temperature or voltage measurement values.

*2: CAN: Controller Area Network. Standard of robust internal communication network designed to allow microcontrollers and devices to communicate with each other in applications without a host computer.

Our test stations are applied in universities, test laboratories and research institutions as well as for the assembly of batteries and cells in the automotive branch.

Battery Emulator Technology TrueData X-OPS 48

The TrueData X-OPS 48 systems (Figure 5) are able to emulate the behavior of electrical energy storage systems up to 60 V both functionally and electrically. Therefore they are perfectly qualified for uses like motor test stations, electromotor test stations or 48 V component tests.

Due to the universal port concept, the devices are easy to actuate via CAN interface and consequently it is completely unproblematic to include them into preexisting test runs. Because of the compact construction, there is also a mobile version of the TrueData X-OPS 48 devices, which can be used comfortably with various test stations.

Currents up to ± 500 A are possible for the simulation of starter behaviors and start-stop scenarios. Higher currents and performances are also achievable due to parallel connection. In addition to constant modes of power, voltage, resistors and performance, it is even possible to set switching conditions and alarm boundaries.

The deposited simulation models permit the emulation of:

- Batteries, battery modules, battery packs and battery systems
- Fuel cells, fuel cell stacks and fuel cell systems
- 48 V on-board power supplies in vehicles

Individualized, time-discrete, time-continuous or hybrid simulink and state flow models can also be processed. TrueData X-OPS 48 is furthermore optionally applicable as a battery tester.

Software TestWork

TestWork (Figure 6) is FuelCon's intuitive software for the automated operation of test stations of the Evaluator product line. Tailored to the specific requirements of our customers, the software not only allows the operation of single test stations, but also enables the management of complete test fields. The graphical user interface has been developed in close consultation with our customers and respects the latest trends in software ergonomics. TestWork focusses on an intuitive operation and does not depend on the skills of the particular user.



Figure 5 TrueData X-OPS 48

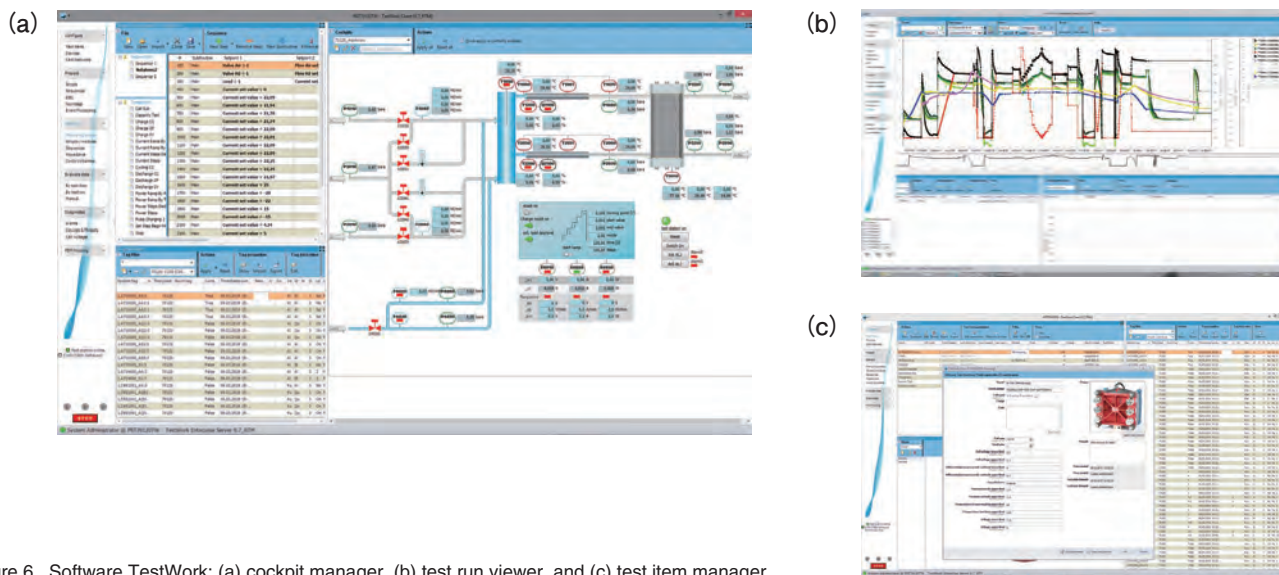


Figure 6 Software TestWork; (a) cockpit manager, (b) test run viewer, and (c) test item manager.

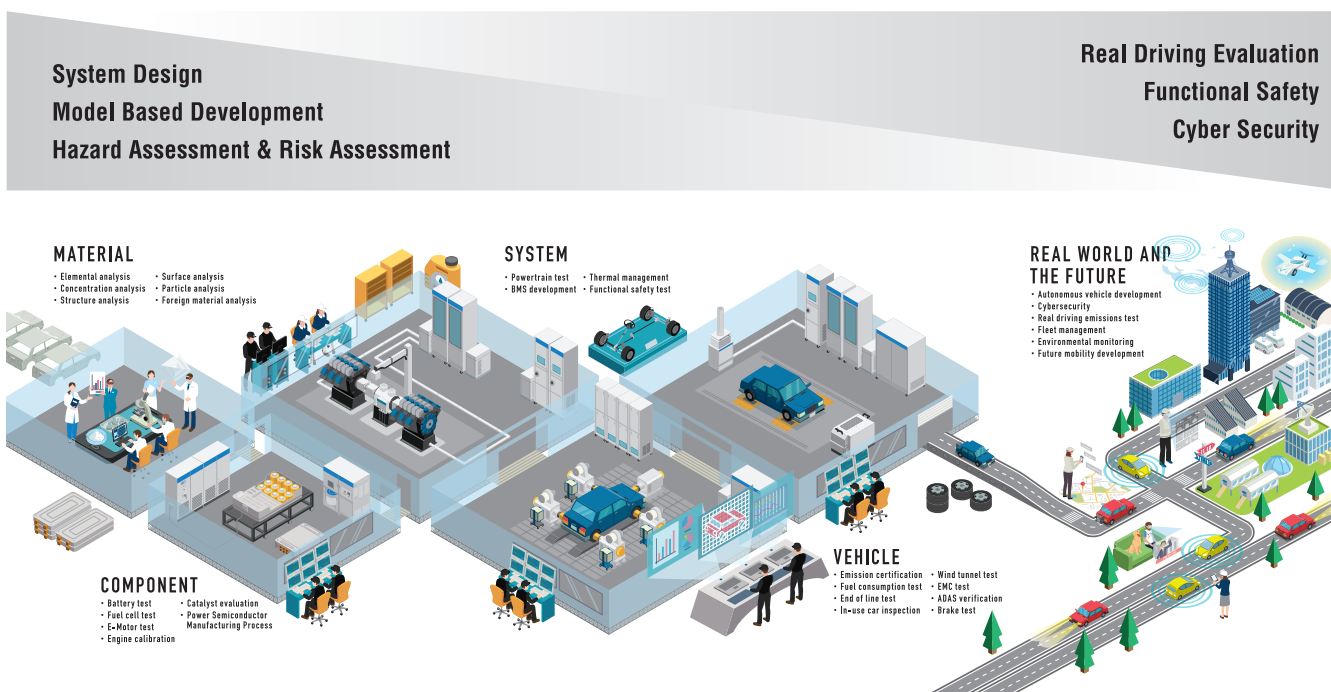


Figure 7 HORIBA front-loading testing system

Our Capability

As shown in Figure 7, “Measure” materials, components, systems, and the car itself in the lab, on the road, and in the simulation. And by automating “Measure”, “connecting” labs and laboratories, and “connecting” labs and actual roads through simulations, we support the efficiency, speed, and optimization of development processes and various tests for motorized vehicles. FuelCon will continue to be assisting them in overcoming the associated technical challenges through the application of our battery and fuel cell validation solutions.

* This content is based on our investigation at this publish unless otherwise stated.



Yasunari HANAKI

花木 保成

Manager, System Solution Dept.
Research & Development Division, HORIBA, Ltd.
株式会社 堀場製作所
開発本部 システムソリューション部
先行技術担当マネジャー



Carsten Krüger

カーステン クルーガー

Head of Marketing, Team Leader Marketing &
Administration
Sales Department
HORIBA FuelCon GmbH

FuelConとHerrmann博士ご夫妻との縁

FuelCon and Relationship with Dr. Rudolf Herrmann and Dr. Karin Herrmann

石田 耕三

Ishida KOZO, Dr. Eng.



Rudolf博士のご自宅で



奥様(Karin博士)の墓前にて



1996年 送別会にて、石田フェロー(前左)とKarin博士(右)

2019年6月3日(月曜日), FuelCon社*¹訪問の後, ベルリンに住んでおられる Rudolf Herrmann博士を訪ねて, 昨年亡くなられた奥様のKarin博士のお墓参りをして来ました。

Herrmannご夫妻は1994年から2年間, 特別ゲスト研究者として堀場製作所の開発部門で研究され, 同時に当時の若手開発者へのご指導をいただきました。Karinさんからはレーザーダイオードに関する知識と技術を指導いただき, 現在, 高感度ガス計測に応用されている量子カスケードレーザー(QCL)導入のきっかけにもなりました。ご主人のRudolf博士も半導体薄膜生成とその物理的特性などに関する指導を頂き, ISFETの電極開発やMEMSプロセスの開発の基本構築にも貢献にいただきました。それぞれのご専門のお立場から, 本誌にも論文を寄稿いただきました^[1, 2]。そのご縁で, 今でもお付き合いがあり, 今回の訪問となりました。

先日, 堀場厚会長兼CEOが, FuelCon社が本拠を置くザクセン=アンハルト州(The federal state of Saxony-Anhalt)のReiner Haseloff知事と面談されましたが, Rudolfさんとお話から, その知事は, KarinさんがHunboldt大学(ベルリン)物理学教授時代の教え子であることが分かりました。Herrmannご夫妻とお会いして20年近い時を経て, 堀場厚会長兼CEOのHaseloff知事との面会を通じて, 再びHerrmannご夫妻との関係を知り得たことは偶然とは言え不思議なご縁を感じました。お世話になった多くの方々とのご縁に恵まれた私の人生を振り返り, 技術を通じた人とのつながりを大切にすることで, 若い人達にもこのような幸せを感じてほしいと願っています。



Reiner Haseloff州知事(The president of the federal state of Saxony-Anhalt)(右)と堀場厚会長兼CEO(左)との面会



*1: FuelCon社について

会社名 HORIBA FuelCon GmbH, 設立2001年(FuelCon AG)
本社所在地: Magdeburg-Barleben, Sachsen-Anhalt, Germany

同社のザクセン=アンハルト州関連の受賞実績

Entrepreneur Award 2012 for exemplary entrepreneurial commitment, awarded by the FDP regional association of Boerde district in Saxony-Anhalt(新事業を起業した会社の優れた貢献を称え, ザクセン=アンハルト州のBoerde地区のFDP地域協会より授与)

Hugo-Junkers-Innovation-Award 2006 for development and market introduction of the HORIBA FuelCon TrueData-Line, presented by the Ministry of Employment and Economic Affairs of the Federal State Saxony-Anhalt(HORIBA FuelCon TrueData-Lineの開発および製品の市場展開を称え, 連邦州ザクセンアンハルト州雇用経済省より授与)。

* 本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] Rudolf Herrmann, *Readout*, No.8, pp 61-68(1994).
- [2] Karin Herrmann, *Readout*, No.10, pp 10-19(1995).



石田 耕三

Ishida KOZO

株式会社 堀場製作所 フェロー
工学博士
Fellow
HORIBA, Ltd.
Dr. Eng.

平面型イオンセンサを用いた乳牛の 血液中カルシウムイオンの現場における迅速な測定

On-site Quick Measurement of Calcium Ion in Blood of Dairy Cow
with Flat Ion Sensor

内海 理伽

Rika UTSUMI

乳牛の血液中のカルシウムイオン (iCa) が低下する低カルシウム血症は、多くの周産期の乳牛が罹患しているといわれている一般的な疾患である。乳牛の健康状態を良好に保ち、牛乳の生産量を維持するためには、iCaの測定と迅速な処置が求められる。しかし、iCa濃度の精確な測定には厳密な嫌気的環境、温度管理が必要であるため、現場で迅速に測定することはできない。本稿では、カスタマイズしたLAQUAtwinカルシウムイオンメータを用いることで、現場で迅速に血液中のiCa濃度を測定できることを紹介する。

Hypocalcemia due to decreases of calcium ions (iCa) in blood of dairy cows is a common disease that affecting many perinatal dairy cows. The iCa measurement and quick treatment are strongly required in order to keep dairy cow healthy and maintain milk production. However, the iCa concentration cannot be measured quickly on site because accurate measurement of iCa requires strict anaerobic environment and temperature control. In this paper, we introduce that the iCa concentration in blood can be measured quickly on site by the use of the LAQUAtwin calcium ion meter.

キーワード

低カルシウム血症 現場測定 カルシウムイオンセンサ LAQUAtwin
Hypocalcemia On site measurement Calcium ion sensor LAQUAtwin

はじめに

周産期の乳牛では、血液中のカルシウムイオン (iCa) 濃度が生理的に低下しやすくなる^[1]。iCa濃度が著しく低下した場合、意識低下や産後起立不能といった症状を呈し^[1]、その他の周産期疾病の原因にもなり得る^[2, 3]。このような一連の症状は低カルシウム血症と呼ばれ、乳牛の主要疾患の一つである^[1]。この中でも諸症状を呈しない無症候性の低カルシウム血症は、周産期の乳牛の約50%が罹患している一般的な疾患であるといわれており、牛乳の生産量を維持するための乳牛の健康管理における課題の一つである^[4]。

乳牛の健康状態を把握するためには、血液中に含まれている総カルシウム (tCa) の中でも、生理活性を有するiCa濃度の分析が必要である^[4, 5]。

tCa濃度の分析には、検体に試薬を添加し反応させ、光学系の検出器で測定する方法などが用いられており、比較的安価かつ簡便に、安定して測定することができる^[4]。しかし、光学系を必要とするtCa濃度の分析装置は大型であり屋外

で使用することはできず、さらに検体の前処理が必要である場合が多く、迅速に結果を得ることはできない。また、tCa濃度の測定結果からiCa濃度の変動を予測することは難しく、また水分補給状態や乳牛の生理的変化によるアルブミン濃度の変動の影響を受けてしまう^[4]。したがって、tCa濃度を現場で迅速に測定することはできず、tCa濃度からiCa濃度を推測し、乳牛の健康状態を適切に把握することもできない。

一方で、iCa濃度の測定においては検体の前処理は不要であり、全血のまま測定することができる。しかし、iCa濃度は検体のpH変動に容易に影響を受け濃度変動してしまう。これを防ぎ、精確にiCa濃度を測定するためには厳密な嫌気条件と温度調整が必要である。これらを実現するため、iCa濃度の測定系には一般的に流通型セルが用いられるが、装置は大型で複雑な構造になり、測定コストも高くなってしまふ^[7]。そのため、現場で迅速にiCa濃度を測定し、乳牛に適切な処置を行うことは難しい。

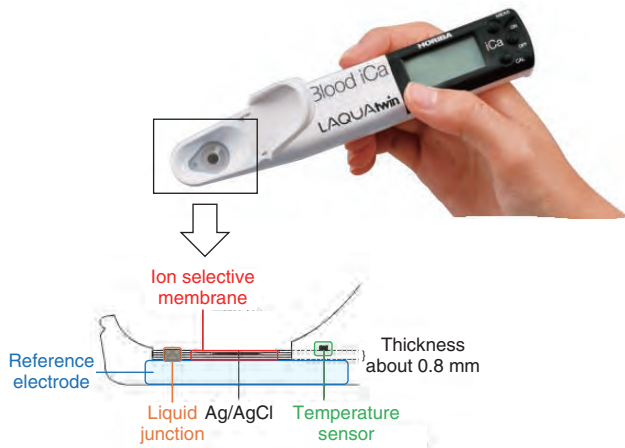


Figure 1 Schematic diagram of the ion flat sensor of LAQUAtwin

LAQUAtwinシリーズは、イオン選択性電極法を採用したコンパクト水質計である。Figure 1に、LAQUAtwinシリーズのイオンセンサの模式図を示した。測定部には薄さ約0.8 mmの平面シートを採用しており、比較電極の液絡部と応答膜が同一平面上に存在している。この平面センサにより、測定に必要なサンプル量が0.3 mLという微量測定が可能となる。また、測定部と表示部が一体となっており、片手で持ち運べるサイズであるため、現場で簡易にイオン濃度を測定することができる。

本稿では、既存の測定方法では現場で迅速にiCa濃度を測定できないという課題を、LAQUAtwinカルシウムイオンメータを用いることで解決できることを紹介する。

血液中のカルシウムの存在形態

tCaは血液中で、主に3つの形態で存在している (Figure 2)。tCaのうち、50%がアルブミンなどのタンパク質と、5%がクエン酸やリン酸といった有機酸と結合しており、残りの45%がイオン化した状態 (iCa) で存在している [5]。iCaは神経筋興奮、血液凝固、酵素反応、ホルモンおよび神経伝達物質の放出反応などに寄与しており、生理活性を有するのはiCaのみである [5, 6, 8]。これが、乳牛の健康状態を把握するために、iCa濃度の分析が必要となる理由である [4]。研究

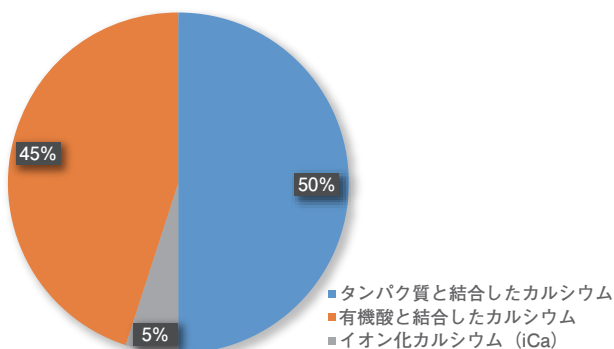
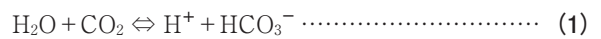


Figure 2 Ratio of forms of calcium in blood

例により多少の違いがあるが、乳牛の血液中のiCa濃度は1.05~1.30 mmol dm⁻³が正常値であるとされており、0.9 mmol dm⁻³以下で低カルシウム血症と診断される [5]。

pH変化に伴うiCa濃度の変化

生体の血液中のpHは7.3~7.4に厳密に保たれている [9]。血液中のpHは炭酸水素イオン (重炭酸イオン) の平衡状態によって変動し (Equation 1)、この重炭酸イオン緩衝系は、生体の恒常性を維持する緩衝系の中で、最も重要な生体システムである [10]。



しかし、採血後の検体においては、検体の処理方法や周囲温度、好氣的条件下に置かれる時間など様々な要素の影響を受け、容易にpHは変化してしまう [7]。tCaの50%がアルブミンなどのタンパク質と結合しているが、この結合状態は血液のpHによって変動する。血液中のiCaおよびpH、アルブミンの平衡状態の模式図をFigure 3に示した。例えば、検体の温度が上昇したとき、二酸化炭素の溶解度は低下するためEquation 1の反応は左に進み、H⁺が減少するためpHは上昇する。このH⁺の減少は、アルブミンと結合しているH⁺が解離することで平衡状態が保たれるが、H⁺を供給したアルブミンはiCaと結合し、安定状態へと移行する。よって、pHが上昇すると結果としてiCa濃度が低下してしまうのである。上述の通り検体のpHは様々な要因によって変化してしまうため、pHの変化すなわちiCa濃度の変動は容易に起こってしまうのである。

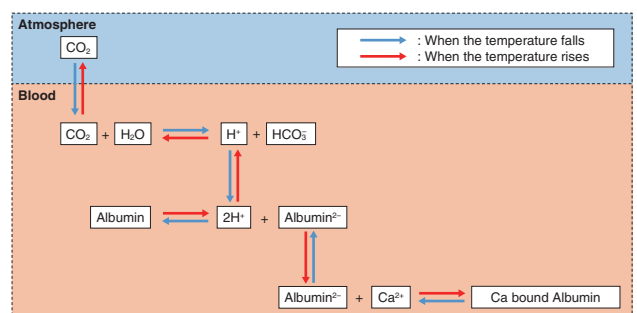


Figure 3 Schematic diagram of the equilibrium state of iCa, pH and albumin in blood with temperature change

平面センサを用いたiCa測定の課題

現在、iCa濃度を測定するためには、検体のpHの変動を抑えるため、流通型セルを用いた測定機器を用いることが一般的である。これらの装置は校正、測定とも嫌氣的環境下でかつ一定の温度で実施することが可能であり、測定中の検体の変質を最低限に抑えることができる。これによりiCa濃度を高精度で測定することが可能となり、乳牛に対

してだけでなく、ヒトの臨床現場でも広く用いられている。一方で、高精度の測定を実現するために装置は複雑で取り扱いが難しくなるため、屋外での測定が困難であり、かつ1測定あたりのコストが高額となる。iCa濃度を測定し、それぞれの乳牛への処置を決定する現場での使用には不向きな装置であるといえる。

これに対し、開放系である平面センサを用いると、微量の検体で測定が可能であるため装置を小型化でき、場所を選ばず使用することが可能である。この特徴から、現場で迅速に乳牛の血液中のiCa濃度を測定するには最適の装置であるといえる。しかしながら、この方法では、検体を密閉できないうえに検体が少量であるため、大気中と検体中の二酸化炭素の平衡反応や、外気温の影響による温度変化が必ず起こってしまう。その結果、検体のpHが非常に変化しやすい状況下での測定となる。つまり、開放系の平面センサでは高精度のiCa測定は難しく、低カルシウム血症かどうかを診断することはできない。

iCa濃度は乳牛の健康状態を左右し、最終的には牛乳の生産量に影響を与える。そのため酪農現場では、乳牛の健康状態を判断し、迅速に処置を行うことが強く求められる。既存の分析方法を用いることで高精度のiCa濃度測定は可能であるが、現場で迅速に測定することはできない。そのため、高精度でiCa濃度を測定できない平面センサであっても、現場で迅速にiCa濃度のスクリーニングを行うことができれば、精密検査が必要な乳牛を発見することができ、応急処置や治療にかかる時間とコストを削減することができる。以下に、平面センサを用いて乳牛の血液中のiCa濃度を測定するためにカスタマイズした点と、評価内容を紹介する。

iCa測定専用装置にするためのカスタマイズ

イオン選択性膜を用いたイオンの測定では、イオン選択性膜と比較電極をサンプル中で接触させたときに発生する電圧を測定することでイオン活量を求めている。LAQUAtwinシリーズは多様な水溶液を測定対象としているため、センサの内部液中のiCa濃度を 50 mmol dm^{-3} としていた。本稿では、測定の際の検体の温度影響を低減するため、イオン選択性電極の等温交点、すなわちセンサの内部液中のiCa濃度を 1 mmol dm^{-3} に調整した。この 1 mmol dm^{-3} という濃度は、乳牛の血液中のiCa濃度の平均値から決定した。

検体を測定する前には、必ずイオンセンサを標準液で校正する必要がある。イオンセンサの校正には、測定対象となるイオンが含まれる溶液を用いるのが一般的である。しかし、血液中にはiCa以外にもナトリウムイオンやカリウムイオンが含まれているため、干渉影響を受ける。その影響

を低減するため、血液の電解質組成と類似した溶液を用いて校正を行うことにした。

さらに、血液を測定する場合、血液中の固体成分の付着などによるセンサ表面の汚れが懸念される。平面センサは流通型セルと比べ、検体と触れるセンサの面積が広い。そのため表面に汚れが付着しやすく、センサ感度の低下が引き起こされる。タンパク質分解酵素を添加した専用の洗浄液で表面を洗い流すことで、センサ感度の低下を防いだ。

平面センサや標準液、洗浄液をカスタマイズしたLAQUAtwinで乳牛の血液中のiCa濃度を測定し、スクリーニングが可能であることを証明するためには、以下の3点を確認、決定する必要がある。

1. iCa濃度のスクリーニングをするにあたり、精確さが誤診断を起こさない許容範囲内であること
2. 低カルシウム血症に罹患した乳牛のiCa濃度が、健康な乳牛のiCa濃度より低い値を示すこと
3. 検体の温度変化によるiCa濃度の変化を考慮した、最適な測定温度条件を決定すること

NIST標準物質の測定による精確さの確認

まず、精確さが誤診断を起こさない許容範囲内であるか確認した。NISTの標準物質(STANDARD REFERENCE MATERIAL 956d Electrolytes in Frozen Human Serum)を測定し、値付けされたiCa濃度とLAQUAtwinの測定値を比較した。標準物質のiCa濃度は $1.17 \text{ mmol dm}^{-3}$ 、 $1.47 \text{ mmol dm}^{-3}$ 、 $1.77 \text{ mmol dm}^{-3}$ の3種類である。測定結果をFigure 4に示した。図中の○はLAQUAtwinの測定値を示しており、標準物質のiCa濃度との誤差の範囲を点線

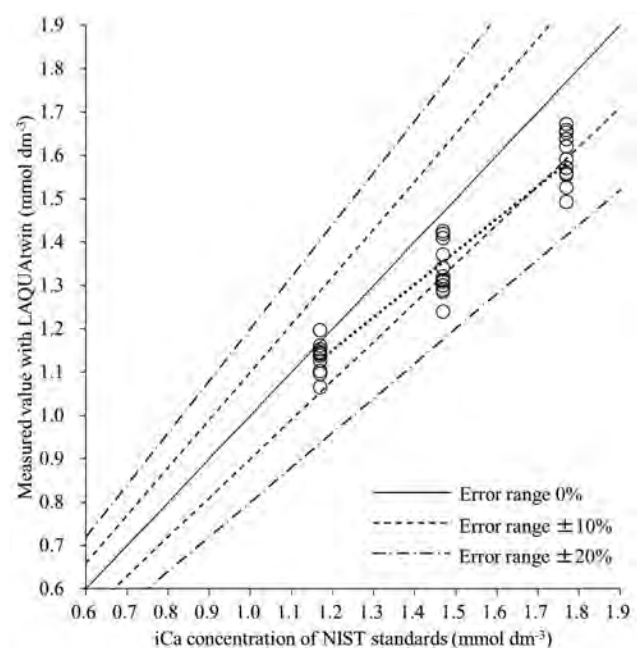


Figure 4 Measurement results by LAQUAtwin of standard substances of NIST

で示した。3種類の全てのiCa濃度の標準物質において、LAQUAtwinの測定値は標準物質のiCa濃度に対して $\pm 20\%$ の範囲内であった。標準物質のiCa濃度は流通型セルを用いた測定機器で決定されている。一方でLAQUAtwinは開放系の平面センサで測定を行っている。LAQUAtwinの測定値と標準物質のiCa濃度との差は、この測定原理の違いにより発生する、測定中のサンプルのpH変化が原因であると考えられた。乳牛の血液中のiCa濃度の正常値は約 1.2 mmol dm^{-3} 程度であり、 0.9 mmol dm^{-3} 以下になると低カルシウム血症が疑われる。 $\pm 20\%$ の誤差を有していても誤診断に繋がる可能性は低く、スクリーニング用のチェックとしては問題ない精度を有していると考えられる。

低カルシウム血症罹患乳牛の検体測定

実際の測定対象である低カルシウム血症に罹患した乳牛の血液を測定し、iCa濃度変化を示すことができ、スクリーニング用のチェックとして運用が可能であるか確認を行った。iCa濃度の基準には、血液ガス測定装置ABL 800 FLEX (Radiometer Medical ApS社製、以下ABL)に搭載されているイオン電極で測定した値を用いた。このABLのイオン電極は流通型セルを用い、 37°C で校正、測定を行っている。乳牛の血液は尾部から採血し、抗凝固剤としてヘパリンリチウムを添加した。この血液検体をLAQUAtwinとABLの2装置で測定した結果をFigure 5に示した。図中では、LAQUAtwinの2個のセンサで3回ずつ測定した平均値を○で示しており、最大値と最小値をエラーバーで示した。ABLの測定値は△で示した。この乳牛は、出産前には $1.25 \text{ mmol dm}^{-3}$ であったiCa濃度が、出産直後に $0.94 \text{ mmol dm}^{-3}$ にまで低下した。その結果、低カルシウム血症の症状を呈し、それに起因する疾病にも罹患した。その後、手術、治療を行い、iCa濃度は $1.18 \text{ mmol dm}^{-3}$ まで回復した。

LAQUAtwinの測定値は、ABLの測定値より平均で $0.10 \text{ mmol dm}^{-3}$ 低い値であった。上述の通り、平面センサであるLAQUAtwinとABLでは測定機構や測定温度が異なっている。平面センサで測定を行う場合は、測定中にサンプル中の二酸化炭素濃度が減少してpHが高くなり、その結果iCa濃度が低下する。LAQUAtwinとABLとの差はこの変化が原因と考えられた。その一方で、LAQUAtwinの測定結果は乳牛の健康状態によるiCa濃度の変化を示すことができていた。従来のiCa濃度の分析では、血液を採取した後装置が設置してある部屋まで戻り、検体の前処理を行った上での測定が必要であった。LAQUAtwinを用いることにより、現場で簡単にiCa濃度をチェックすることができる。診断には用いることができないが、低カルシウム血症のおそれがある乳牛を見つけ出し、精密検査に繋げるためのスクリーニング用チェックとしては、十分に有用であると判断できた。

最適な測定温度条件の決定

温度変化によるiCa濃度の変化を考慮し、測定する上での最適条件を決定するため、検体の温度を任意に調整して測定を行った。ウォーターバスを用いて任意の温度に調整した検体を測定した。各検体温度における測定結果をFigure 6に示した。図中の縦軸はLAQUAtwinの測定値からABLの測定値を引いた2装置の測定値の差を示している。エラーバーは最大値と最小値を示した。検体の温度が 15°C 以下の場合、LAQUAtwinの測定値はABLの測定値よりも約 $0.3\sim 0.4 \text{ mmol dm}^{-3}$ 高かった。これは、温度が低下したことにより二酸化炭素の溶解度が上昇してpHが低下し、その結果iCa濃度が高くなったと考えられた。反対に、検体の温度が 30°C 以上の場合、LAQUAtwinの測定値はABLの測定値よりも約 0.1 mmol dm^{-3} 低い値であった。先程とは逆に、温度が上昇することにより二酸化炭素の溶解度が低下

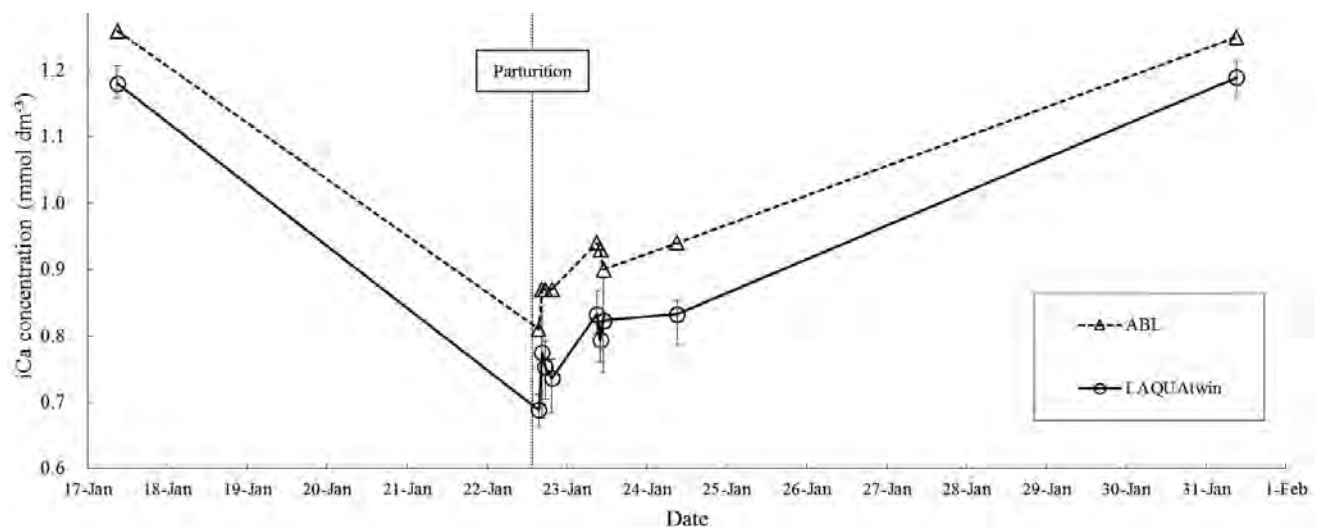


Figure 5 Measurement results by LAQUAtwin and ABL of blood samples of dairy cow suffering from hypocalcemia

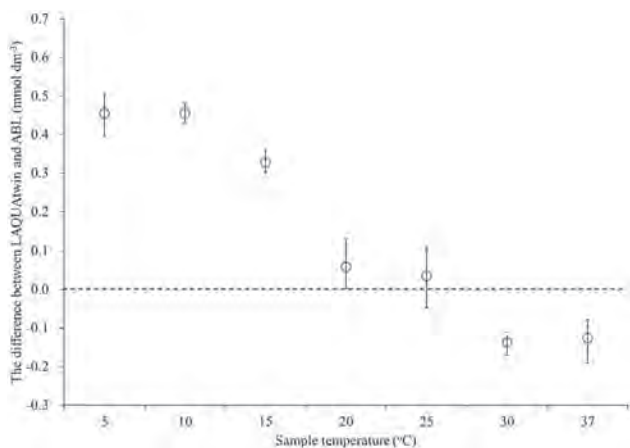


Figure 6 The difference between measured value by LAQUAtwin and ABL of blood samples with each temperature

してpHが上昇し、iCa濃度が低くなったと考えられた。検体の温度が20～25℃の場合、iCa濃度の基準としているABLとの差は0.1 mmol dm⁻³以下であった。以上より、検体の温度変化はpH変化を引き起こし、iCa濃度が変化することが確認できた。また、LAQUAtwinを用いた測定においては、検体の温度を20～25℃に調整することで、流通型セルを用いて測定を行うABLと高い相関が得られることがわかった。

おわりに

現場で迅速にiCa濃度を測定できないという課題が、平面センサを用いることで解決できることが明らかとなった。開放系である平面センサで血液中のiCa濃度を測定するという方法は、これまでにない新しい発想である。また、血液中のナトリウムイオンやカリウムイオンの測定は乳牛の健康管理上非常に重要であり、iCa以外にも更なるニーズは数多く存在している。今後も、現場で簡単に、迅速に測定することができるLAQUAtwinの利点を生かしたアプリケーション開発を展開し、酪農業界だけでなく、あらゆる業界における多様なニーズに貢献していく。

謝辞

乳牛の血液の測定にあたり、サンプルを提供下さいました京都府農林水産技術センター畜産センターの上村浩一元所長、山岡俊幸元部長、岩崎方子元技師に深く感謝申し上げます。また、本製品の評価にあたり、多大なご協力と助言を賜りましたCornell UniversityのDr. Rafael C. Nevesに心より感謝申し上げます。

* 本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] 山岸則夫. 乳熱の病態. 日本獣医師会雑誌. 2012, 65, p. 857-863
- [2] 高橋史ほか. 分娩直後食欲不振の改善を目的としたグルコン酸カルシウム輸液剤投与方法の検討. 獣医輸液研究会会誌. 2007, 7 (1), p. 6-11
- [3] 平井洋次. 低カルシウム血症の原因と対策. 日本獣医師会雑誌. 2005, 58, p. 12-19
- [4] R. C. Neves, et al. Method comparison and validation of a prototype device for measurement of ionized calcium concentrations cow-side against a point-of-care instrument and a benchtop blood-gas analyzer reference method. J. Dairy Sci. 2017, 101, p. 1334-1343
- [5] 加藤敏英. カルシウム輸液剤の投与方法を再考する. 獣医輸液研究会会誌. 2004, 4(1), p. 1-4
- [6] 桧山尚子. 乳牛におけるイオン化カルシウムの動態. 広島県獣医学会雑誌. 2006, 21, p. 4-7
- [7] 岡本輝夫ほか. 好气的条件下におけるpH補正血清Ca⁺⁺測定についての検討. 日本臨床検査自動化学会会誌. 1983, 8(3), p. 292-297
- [8] 鈴木一由. 乳熱の輸液. Fluid Therapy in Large Animal Practice. 2011, 11(1), p. 14-16
- [9] 柴垣昌功, 塚本玲三. やさしい 電解質 血液ガス 酸塩基. 中外医学社. 1985
- [10] 楠木啓史ほか. 生化学分析装置における血清重炭酸塩(総CO₂)の測定. 医学検査. 2018, 67(1), p. 23-28



内海 理伽

Rika UTSUMI

株式会社 堀場アドバンスドテクノ
開発本部 新製品開発1部
New Product Development Department 1
Research & Development Division
HORIBA Advanced Techno, Co., Ltd.

Product Introduction

新製品紹介

蛍光吸光分光装置「Duetta」の紹介

Duetta: A New Fluorescence and Absorbance Spectrometer Providing Unique Two-in-One Benefits, Plus High Speed and NIR Fluorescence Detection

小口 真弘

Masahiro OGUCHI

ケリー ジョセフ デーヴィス

Cary Joseph DAVIES

HORIBAは、2018年3月に蛍光分光光度計の新製品である蛍光吸光分光装置Duettaを発表した。HORIBAはこれまで研究開発向けのハイエンドな蛍光分光測定装置の開発に注力し、世界における蛍光分光市場のトップシェアを獲得してきた。Duettaはミドルレンジ市場向けの製品であり、HORIBAにとって新たな市場を切り開くための新製品である。本報では、Duettaの製品概要、主な特長、およびアプリケーション事例について紹介する。

In 2018, the HORIBA Instruments Fluorescence Division introduced a mid-market analytical spectrometer, called Duetta™, the first such “value, mid-market” instrument from the division. For decades now HORIBA has had a global leading market share of high-end research instruments, and the introduction of this new instrument opens up new market opportunities for HORIBA. The design of this new spectrometer concept, the sales success in the market in just its first year, and the key markets and applications of Duetta are all presented.

はじめに

HORIBAは、2018年3月に蛍光分光光度計の新製品である蛍光吸光分光装置Duettaを発表した(Figure 1)。これまで、HORIBAはハイエンドな蛍光分光測定装置の製品開発を行ってきた。HORIBAが提供する蛍光発光の定常状態および過渡状態を測定する蛍光分光測定装置にはFluorolog-3, FluoroMax Plus, QuantaMaster 8000, DeltaFlexおよびAqualog等があるが、いずれも最先端研究に用いられるハイエンド市場向けの製品であり、この市場においてHORIBAは、リーディングカンパニーとしての地位を確立している。

一方で、ミドルレンジの蛍光分光光度計の市場は、すでに成熟しており、この市場の製品は、低価格でシンプルな装

置構成に加え、光電子増倍管(PMT)を搭載した波長走査型の蛍光分光光度計が一般的である。Duettaは、HORIBAにとって新しい市場であるミドルレンジの卓上分析装置市場に参入するために開発された製品であり、従来の蛍光分光光度計にはない特長を数多く有している。

蛍光分光測定とは

蛍光励起スペクトル測定は、発光波長を固定し、励起波長を走査することで行われる。したがって、蛍光励起スペクトルは、ある特定波長の蛍光発光を誘起するために、蛍光物質が吸収する光量とその波長についての情報を与える。また、蛍光励起スペクトルは、吸収スペクトルに似ているが、溶液または試料中のすべての吸光物質の情報を含む吸収スペクトルとは異なり、試料に含まれる発光物質にのみ由来する。一方で、蛍光発光スペクトル測定は、励起波長を固定し、発光波長を走査することで行われる。一般的に、ある特定分子の蛍光スペクトルおよび励起スペクトルは、互いに鏡像関係となり、蛍光スペクトルは、励起(吸収)スペクトルよりも長波長(低エネルギー)側に現れる(Figure 2)。

蛍光および励起スペクトルを解析することで、蛍光を発する試料の状態やその変化を知ることができる。スペクトル強度やピーク波長は、蛍光物質固有の性質のほかに、温度、



Figure 1 Duetta two-in-one fluorescence and absorbance spectrometer

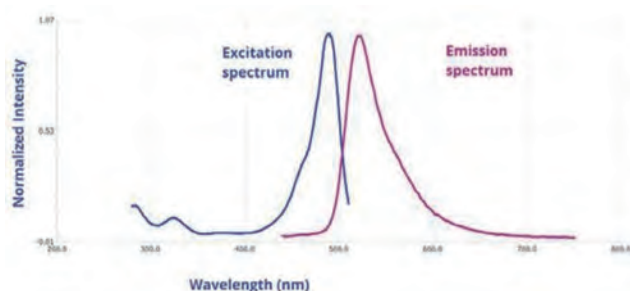


Figure 2 A fluorescence excitation spectrum (blue) and an emission spectrum (purple).

濃度、またはその周囲の分子との相互作用などによって変化する。この周囲の分子には、消光剤やエネルギーを吸収するアクセプター分子が含まれる。蛍光物質の中には、溶媒の特性(pH, 極性, および特定のイオン濃度など)に敏感なものもある。

蛍光吸光分光装置Duettaの特長

Duettaは、従来の蛍光分光光度計にはない多くの特長を有している (Table 1)。本報では、蛍光・吸光度測定, CCD検出器搭載による高速かつ広波長範囲測定, そして、これら

Table 1 Key specifications of Duetta

項目	内容
測定モード	吸光度法および蛍光分光法
光源	75 Wキセノンアークランプ
波長走査速度	510,000 nm/min
蛍光測定用検出器	CCD検出器
蛍光測定波長範囲	250-1100 nm
吸光度測定用検出器	シリコンフォトダイオード
励起/吸収測定波長範囲	250-1000 nm
外形寸法(W×D×H)	432 mm×518 mm×366 mm
質量	20.4 kg

を組み合わせた独自の3次元励起蛍光マトリックス測定の応用例について紹介する。

蛍光・吸光度測定を組み合わせた正確な蛍光スペクトル測定

蛍光測定と吸光度測定は相補的な測定技術である。実際、蛍光分光光度計を使用するほとんどの研究室は、吸光度測定を行うための紫外可視分光光度計も所有している。吸光度測定は、蛍光を発しない試料も測定することができるため、より多くの試料に適用可能な測定手法である。一方で、蛍光測定は吸光度測定に比べてはるかに高感度な測定手法である。Duettaは、従来の簡易型の蛍光分光光度計と同じ価格水準で、蛍光測定と吸光度測定の機能を1台に集約した製品となっている (Figure 3)。

1台で蛍光と吸光度測定ができることは、一般的な蛍光分光光度計と比較してすでに大きな価値があるが、Duettaの特長はそれだけにとどまらない。蛍光測定では、濃度の高い試料を測定する際に、内部遮蔽効果(IFE)と呼ばれる試料による励起光の吸収(Primary IFE)と蛍光の再吸収(Secundary IFE)による影響が問題となる (Figure 4)。Duettaは、蛍光スペクトルと同時に得られる吸収スペクトル(各波長における吸光度情報)を用いて、IFEの影響を補正した蛍光スペクトルを得る機能を有している。Figure 4にIFE補正ありと補正なしの場合のフルオレセインの吸光度に対する蛍光強度の関係を示す。IFE補正された蛍光スペクトルは、吸光度情報を使用して次式のように与えられる。

$$F_{corr} = F_{obs} \times 10^{\frac{A_{ex} + A_{em}}{2}}$$

ここで、 F_{corr} はIFE補正された蛍光強度、 F_{obs} は実際に測定された蛍光強度、 A_{ex} は励起波長における吸光度、 A_{em} は発

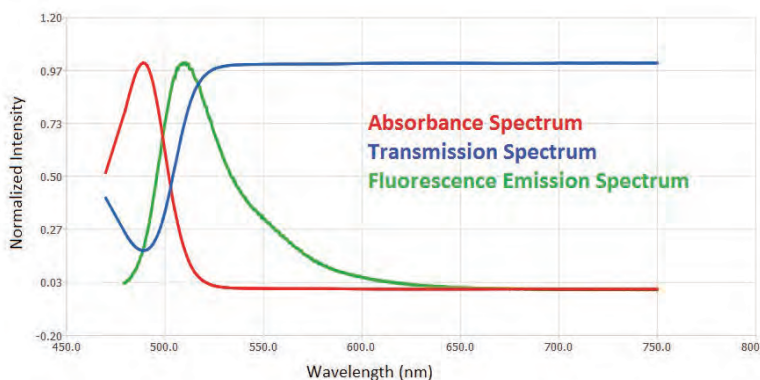
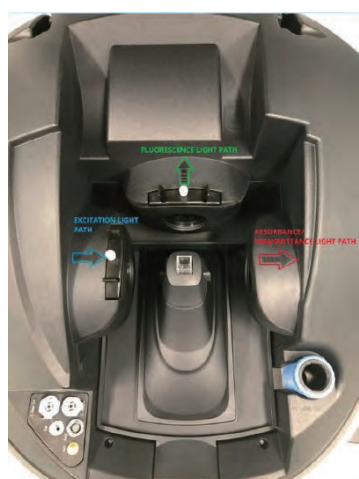


Figure 3 (Left) Duetta sample compartment shows the transmission/absorbance (red) detection optical path and the simultaneous fluorescence optical path (green) at 90 degrees from the excitation beam (blue). (Right) Duetta acquires multiple types of data in a single instrument.

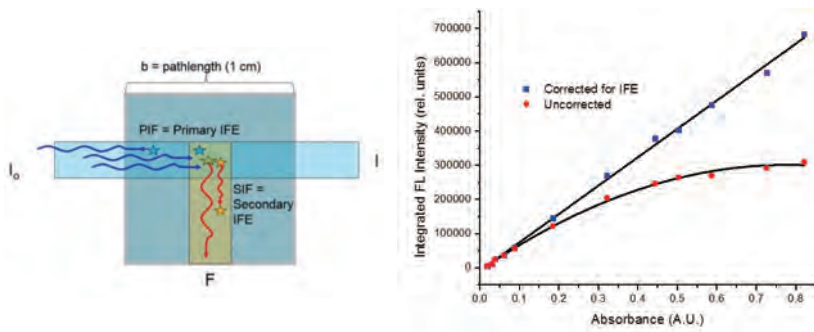


Figure 4 (Left) Top view diagram of a cuvette with sample solution inside, showing incident light (I_0), transmitted light (I) and the path of fluorescence detection at 90 degrees (F). Primary and secondary IFEs on the detected fluorescence intensity are shown with blue and yellow stars, respectively. (Right) The IFE is a well-known physical phenomenon. This experiment shows that the fluorescence of fluorescein at varying concentrations exhibits a non-linear response due to IFE reabsorption (red), and the corrected linear response of Duetta (blue) when IFE correction is implemented. Thus, extending the concentration range wherein the fluorescence signal is quantitative.

光波長における吸光度である。

IFE補正なしでは、吸光度が0.1以上の濃度のときにIFEの影響により蛍光強度が見かけ上は低くなるのに対して、IFE補正ありでは、吸光度が0.1以上の濃度であっても蛍光強度は、吸光度に正比例する。このように、IFE補正によって、広い濃度範囲に対して正確な定量測定が可能となる。

CCD検出器による高速かつ広波長範囲測定

ミドルレンジ市場では、蛍光分光光度計に波長走査型検出器としてPMTが搭載されていることが一般的である。一方、DuettaにはCCD検出器が搭載されており、HORIBAのマルチチャンネル検出技術を駆使することで、従来の蛍光分光光度計で、場合によっては数分かかっていた蛍光スペクトル測定をわずか50ミリ秒で行うことができる。したがって、従来の波長走査型の蛍光分光光度計では実現できない

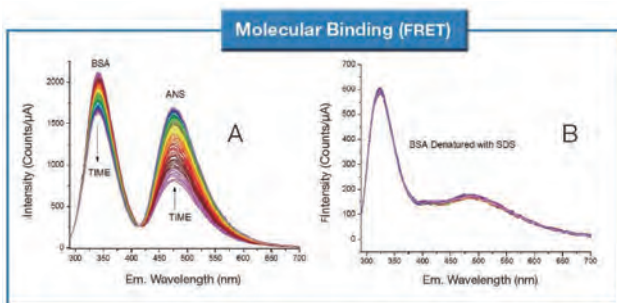


Figure 5 On the left, Image A, Kinetic spectral scans of native BSA protein with rapidly added ANS (3×10^{-6} M). Spectra taken every 100 ms after ANS addition. As ANS binds to native BSA, the BSA Trp emission decreases and the ANS emission increases as a result of Förster resonance energy transfer (FRET), due to proximity of excited Trp and ANS. On the right, Image B, Kinetic spectral scans of SDS-denatured BSA after addition of ANS. Much higher ANS concentration (4×10^{-5} M) is required to affect binding to denatured BSA; no FRET is observed due to increased distances between ANS and Trp.

高速な蛍光測定が可能となった。高速測定の例として、Figure 5に牛血清アルブミン(BSA)とアニリノナフトレンスルホン酸(ANS)の相互作用による時間変化測定の結果を示す。この測定では、BSA溶液にANSを添加することにより、BSAとANSが時間経過に従って相互作用し、BSAからANSにエネルギーが移動することによる蛍光スペクトルの変化をリアルタイムで追跡することができている。

またCCDを検出器として搭載することにより、近赤外(NIR)領域まで測定ができるという特長がある。PMT検出器を搭載した当社の蛍光分光光度計でも、オプションとしてNIR領域に測定波長を拡張

することができるが、標準的な仕様では850-900 nmを超える波長域では蛍光測定を行うことはできない。これに対して、Duettaでは標準仕様で、1,100 nmまで蛍光測定を行うことができる。Figure 6に、レーザーガラスの蛍光を蛍光分光光度計(標準的なPMT搭載)とDuettaで測定した結果を示す。Duettaでは、標準的なPMTの感度の限界波長(約850 nm)を超えてレーザーガラスの蛍光を測定できている。また、NIR領域における蛍光研究は、新規プローブ開発、ナノ材料、半導体、およびライフサイエンス分野において活発に行われており、測定ニーズが高まっている。

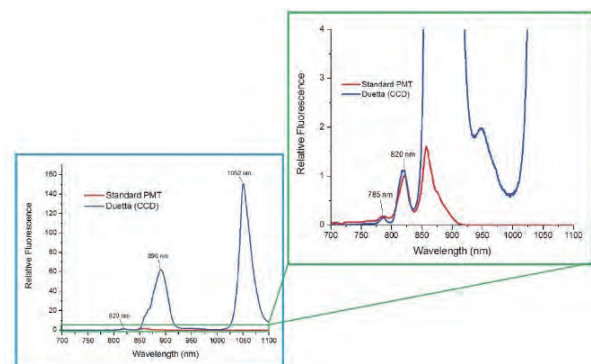


Figure 6 Neodymium laser glass emission spectrum. Ex: 575 nm, 5 nm band pass, Em: 700-1100 nm on fluorometer with PMT (red) and Duetta (blue). Standard PMT sensitivity falls off around 850 nm, while the Duetta CCD detector has sensitivity up to 1100 nm.

HORIBA独自の3次元励起蛍光マトリックス測定：A-TEEM

蛍光スペクトルは、蛍光物質、溶媒、周囲の環境によっても変化する。したがって、励起波長を変えながら一連の波長を順次走査しながら蛍光強度を測定し、得られたデータセットを3次元的に再構成する3次元励起蛍光マトリックス

(Excitation Emission Matrix : EEM)測定は、「蛍光指紋」測定とも呼ばれ、蛍光分光分野では重要な測定手法となっている。EEMデータは、励起波長、蛍光波長、蛍光強度をそれぞれX、Y、Z軸で示した3次元データセットであり、フーリエ変換赤外分光光度計(FTIR)、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)、および質量分析装置(MS)などの他の分析手法で行われているように、成分分析用に市販の多変量解析ソフトウェアで解析を行うことが可能である。これまで、食品科学、水質分析、および医薬品分析の分野で、EEM測定を用いた蛍光成分分析の例が報告されている。

Duettaでは、EEMデータを吸光度情報でIFE補正することにより、従来のEEMよりも正確な蛍光指紋情報を得ることができる。HORIBAでは、この独自のEEM測定技術をA-TEEM(Absorbance-Transmission Excitation Emission Matrix)と呼んでいる。そして、A-TEEMによって得られるデータを多変量解析することにより、一般的な蛍光分光光度計で得られる単純なEEMデータよりもはるかに正確な成分分析の結果を得ることができるようになった。

蛍光吸光分光装置Duettaを用いたアプリケーション

蛍光分子・材料の形や大きさは、じつに様々である。葉緑体(クロロフィル)およびアミノ酸残基であるトリプトファン(Trp)、フェニルアラニン(Phe)、およびチロシン(Tyr)のように、それ自体が蛍光性を有している分子のほかに、非蛍光性の分子や材料を標識するために特別に合成された有機色素や蛍光タグ分子などがある。典型的には、蛍光性有機分子はその化学構造の中に芳香族環や π 共役電子を有

しており、それらの大きさや構造に依存して、有機色素は紫外(UV)からNIR波長で蛍光を発する。

蛍光を発する分子や材料の例を以下に示す。

- ・アミノ酸(Trp, Phe, Tyr)
- ・塩基対誘導体(2-AP, 3-MI, 6-MI, 6-MAP, pyrrolo-C, tC)
- ・葉緑体(クロロフィル)
- ・蛍光タンパク質
- ・有機色素(フルオレセニン、ローダミン、N-アミノクマリンとそれらの誘導体)
- ・希土類元素(ランタノイド)
- ・半導体材料
- ・量子ドット
- ・単層カーボンナノチューブ(SWCNTs)
- ・太陽電池材料
- ・顔料・光沢剤
- ・蓄光剤

このように、蛍光測定は様々な研究・産業分野で行われている。本報では、その中から典型的な蛍光色素である硫酸キニーネ、バイオメディカルイメージング用の銀クラスター、および医学分析・イメージング用途のNIR発光を示すランタノイドの測定例を紹介する。

まず、2つの濃度の異なる硫酸キニーネ溶液(14 μ Mと86 μ M)をそれぞれ、EEM測定とA-TEEM測定した結果を示す(Figure 7)。測定に用いた硫酸キニーネ溶液は、14 μ Mと86 μ Mで、349 nmにおける吸光度は、それぞれ0.08と0.49であった。EEM測定では、濃度の異なる硫酸キニーネ溶液でその形状に差異が生じている。一方で、DuettaのA-TEEM測定では、吸光度の高い硫酸キニーネ溶液においても、吸光度の低い硫酸キニーネ溶液のEEMおよびA-TEEMと同じ形状を示した。これは、A-TEEMのIFE補正機能により、吸光度(濃度)の高い溶液試料においても、物質本来の蛍光指紋が得られることを示唆している。

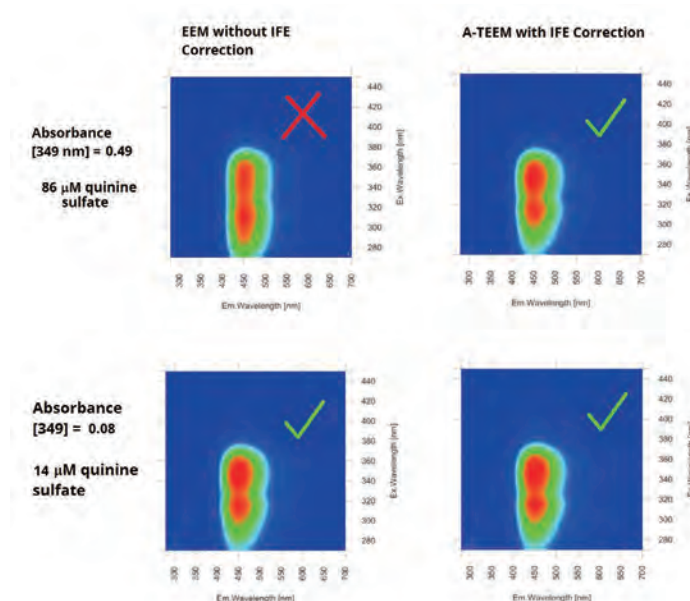


Figure 7 Fluorescence EEMs of two different concentrations of quinine sulfate in tonic water diluted in 0.1 M perchloric acid (aq.) with and without IFE corrections applied.

次に、バイオメディカルイメージングのためのナノ材料開発として、蛍光性銀クラスターの複雑な混合物の識別・特性評価にA-TEEM測定を行った例を示す(Figure 8^{[1])}。本研究では、複雑な混合物からなる銀クラスターをDuettaによりA-TEEM測定し、多変量解析手法の1つとして知られるParallel Factor Analysis (PARAFAC)によって含有成分の分離を行っている。PARAFACの結果、銀クラスター試料の蛍光発光は3つの区別可能

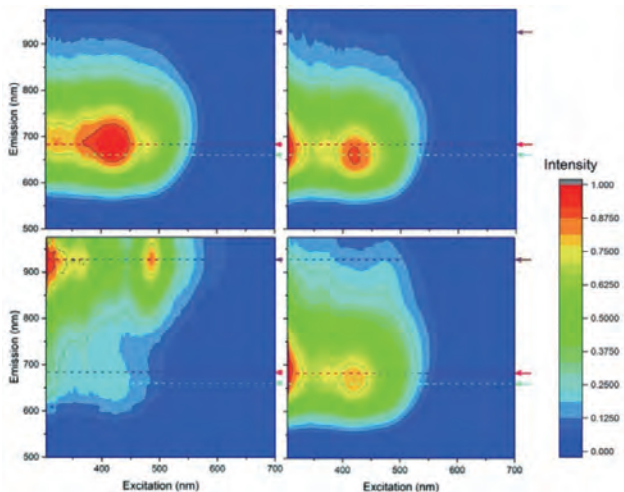


Figure 8 Fluorescence EEM spectra of Ag_A (top left), Ag_B (top right), Ag_C (bottom left) and the crude sample (bottom right). Dotted lines/arrows indicate the relative position of observed emission maxima. All plots are normalized to an intensity of 1 and were corrected for IFEs. The quantum yields of emission for Ag A, B and C are 0.323%, 0.232% and 0.083%, respectively. Reprinted with permission from [1] H. Ramsay, D. Simon, E. Steele, A. Hebert, R. D. Oleschuk and K. G. Stamplecoskie, RSC Adv., 8, 2018, 42080, Copyright 1999 the Royal Society of Chemistry.

な成分(Ag_A, Ag_B, およびAg_C)に分離することができ、それらの蛍光量子収率は、それぞれ0.323%, 0.232%, および0.083%と計算されている。このように、A-TEEMは、他の分析手法では適切な特性評価を行うことができないような複雑な混合物の純度を決定するための強力な分析手法となり得る。

最後に、分子内エキシマを介したランタノイド(イッテルビウムとネオジム)の溶媒依存増感の研究報告^[2]を示す。ランタノイドイオンはNIRで蛍光発光を示すことから、医学や光通信の分野で注目されている。イッテルビウムは1,000 nm付近に、ネオジムは890 nmと1,050 nm付近に蛍光発光を有する。しかし、それらの蛍光発光は、低い吸光係数によって抑制されているため、有機・無機配位子を集光アン

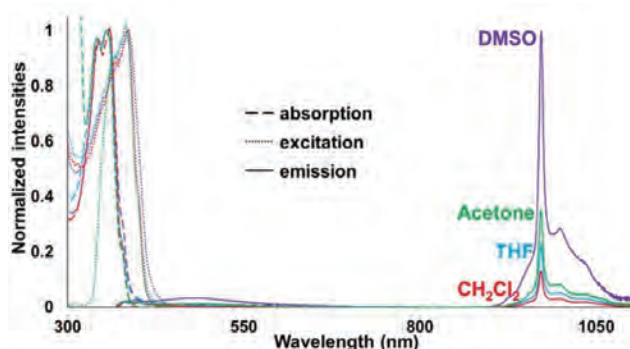


Figure 9 Absorption (dashed), excitation (dotted) and emission (solid) spectra of (Pyr₂POAc)₃Yb(thf) in various solvents (2.6×10^{-6} mol L⁻¹). Excitation collected for emission centered at 970 nm. Emission collected with excitation at 355 nm. Slit widths: 5 nm (excitation/emission). Reprinted with permission from [2] Min Deng, Nathan D. Schley, and Gael Ung, Inorg. Chem., 57,15399(2018), Copyright 2018 American Chemical Society

テナとして用いることでランタノイドイオンを増感する研究が行われている。Figure 9に、配位子としてピレンを用いたイッテルビウム錯体の蛍光強度の溶媒依存測定結果を示す。試料は、342 nmと355 nmに吸収の極大値、365 nmと380 nmに励起スペクトルの極大値、および970 nmに蛍光スペクトルの極大値を示し、その蛍光強度は周囲の溶媒の種類に依存した結果となった。このように、UV領域の蛍光励起測定および吸光度測定からNIR領域の蛍光発光測定を1台の装置で行うことができる。

おわりに

蛍光分光装置Duettaは2018年にHORIBAが発表したミドルレンジ市場向けの蛍光分光光度計である。HORIBAはこれまで何十年もの間、研究開発向けのハイエンドな蛍光分光測定装置を開発し、蛍光分析分野に貢献してきた。Duettaは、一般的な蛍光分光光度計にはない革新的な特長を有している。本報では、数あるDuettaの特長の中から蛍光・吸光度測定およびCCD検出器による高速かつ広波長範囲測定、さらに、これらを組み合わせたHORIBA独自の測定手法であるA-TEEMについて紹介した。また、それらの特長を活かしたアプリケーション事例を示した。本製品が、蛍光分析分野の様々な科学的な課題を解決するために活用されることを願っている。

*本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] H. Ramsay, D. Simon, E. Steele, A. Hebert, R. D. Oleschuk and K. G. Stamplecoskie, RSC Adv., 8, 42080(2018)
- [2] M. Deng, N. D. Schley, and G. Ung, Inorg. Chem., 57, 15399(2018)



小口 真弘

Masahiro OGUCHI

株式会社 堀場製作所
開発本部 科学・半導体開発部 博士(理学)
Scientific & Semiconductor Instruments
R&D Dept. HORIBA, LTD.
Ph. D.



ケリー ジョセフ デーヴィス

Cary Joseph DAVIES

Global Product Line Manager,
Fluorescence Division,
HORIBA Instruments Inc.

Product Introduction

新製品紹介

金属硬化プロセス・製鉄プロセス用ガス分析計の開発 FA-5000/5200シリーズ, MPA-5000, VA-5000WMシリーズ

Development of Gas Analyzer for Metal Hardening Process and Iron Manufacturing Process
FA-5000/5200 series, MPA-5000, VA-5000WM series

森田 淳

Jun MORITA

金属硬化プロセス用のガス分析計としてFA-5000/5200シリーズ, 製鉄プロセス用のガス分析計としてMPA-5000, 燃焼排ガス測定や製鉄プロセスを含む各種プロセス中のガス測定用の分析計としてVA-5000WMシリーズそれぞれを開発した。FA-5000/5200シリーズはパネルマウントのケースで一酸化炭素, 二酸化炭素, メタン等, 最大3成分のガスを同時に測定することができる。その測定原理として非分散形赤外線吸収法を使用している。MPA-5000シリーズは19インチパネルマウントのケースで酸素を測定することができる。その測定原理として磁気力方式を使用している。VA-5000WMはウォールマウントのケースで一酸化炭素, 二酸化炭素, 酸素等, 最大4成分のガスを同時に測定することができる。その測定原理として非分散形赤外線吸収法, 化学発光法, 酸素分析法(磁気力方式, ジルコニア方式, 電極方式(ガルバニ電池形))を使用している。本稿ではこれら分析計の仕様・特長, 使用されている測定原理, 従来モデルからの改良点について述べる。

We developed FA-5000/5200 series as the gas analyzer used in a metal hardening process, MPA-5000 as the gas analyzer used in an iron manufacturing process and VA-5000WM series as the gas analyzer used for a measurement of combustion exhaust gas and gas in various process application. FA-5000/5200 series were designed as a panel mount case and can measure up to three gases at the same time, such as Carbon monoxide, Carbon dioxide and Methane. Non-dispersive infrared method is used as measurement principle. MPA-5000 was designed as a 19-inches panel mount case and can measure Oxygen gas. Magnetic force method is used as measurement principle. VA-5000WM series was designed as a wall mount case and can measure up to four gases at the same time, such as Carbon monoxide, Carbon dioxide and Oxygen. Non-dispersive infrared method, Chemiluminescence method and Oxygen analysis method (magnetic force method, zirconia method and electrode method (galvanic cell type)) are used as measurement principle. This article describes the specification and characteristic of these analyzers, measurement principle used in these analyzers and improvements from conventional model.

装置概要

Figure 1にFA-5000/5200シリーズの外観, Table 1に主な仕様を示す。FA-5000/5200シリーズは金属硬化プロセスである浸炭, 浸炭窒化専用のガス分析計である。パネルマウントのケースで最大3成分のガスを同時に測定することができる。測定原理として赤外線を吸収する様々な成分に対して非分散形赤外線吸収(NDIR: Non Dispersive Infrared)法を使用している。

Figure 2にMPA-5000の外観, Table 2に主な仕様を示す。MPA-5000は汎用酸素ガス分析計で主に製鉄プロセス中のガス測定に使用されている。19インチパネルマウントのケースで, 測定原理として磁気力方式を使用している。

Figure 3にVA-5000WMシリーズの外観, Table 3に主な仕様を示す。VA-5000WMは汎用ガス分析計で主に燃焼排ガス測定や製鉄プロセスを含む各種プロセス中のガス測定に使用されている。ウォールマウントのケースで最大4成分のガスを同時に測定することができる。測定原理として



Figure 1 External appearance of FA-5000 series (left) and FA-5200 series (right)



Figure 2 External appearance of MPA-5000



Figure 3 External appearance of VA-5000WM series

Table 1 Specification of FA-5000/5200 series

Model	FA-5000 series	FA-5200 series
Measurement principle	NDIR (Non-Dispersive Infrared)	
Components to be measured	CO, CO ₂ , CH ₄ , NH ₃	
The number of modules	3	1
Minimum range	0~0.2 vol% (depends on component)	0~0.1 vol% (depends on component)
Maximum range	0~100 vol% (depends on component)	
Range ratio	1 : 10 (depends on component)	
Linearity	±1.0% of full scale	
Zero, span drift	±2.0% of full scale/week	
Gas flow rate	Approx. 0.5 L/min	
Response time	90% response : within 30 seconds	
Warm-up time	60 min	
External dimensions (W×H×D)	424 mm × 424 mm × 149 mm (depth dimension at the time of installation)	164 mm × 424 mm × 149 mm (depth dimension at the time of installation)
Mass	Approx. 23 kg	Approx. 11 kg

Table 2 Specification of MPA-5000

Specification of carrier gas	Nitrogen	Ambient
Measurement principle	Magnetic force method	
Component to be measured	O ₂	
Minimum range	0~1 vol%	0~10 vol%
Maximum range	0~100 vol%	
Range ratio	1 : 10	
Linearity	±1.0% of full scale	
Zero, span drift	±2.0% of full scale/week	±2.0% of full scale/day
Gas flow rate	Approx. 0.5 L/min	
Response time	90% response : within 30 seconds	
Warm-up time	60 min	
External dimensions (W×H×D)	430 mm × 132 mm × 380 mm	
Mass	Approx. 13 kg	

Table 3 Specification of VA-5000WM series

Measurement principle	NDIR (Non-Dispersive Infrared)	CLA (Chemiluminescence)	Magnetic force method	Zirconia method	Electrode method (galvanic cell type)
Components to be measured	CO, CO ₂ , CH ₄ , SO ₂ , N ₂ O etc.	NO		O ₂	
Minimum range	0~50 ppm (depends on component)	0~20 ppm		0~5 vol%	
Maximum range	0~100 vol% (depends on component)	0~5000 ppm	0~100 vol%	0~25 vol%	
Range ratio	1 : 10	1 : 100	1 : 10	1 : 5	
Linearity	±1.0% of full scale				
Zero, span drift	±2.0% of full scale/week				±1.0% of full scale/day
Gas flow rate	Approx. 0.5 L/min	Approx. 0.3 L/min	Approx. 0.5 L/min		
Response time	90% response : within 30 seconds				
Warm-up time	60 min			20 min	40 min
External dimensions (W×H×D)	424 mm × 484 mm × 206 mm				
Mass	14~24 kg (depends on the combination of mounted components)				

NDIR法、窒素酸化物(NO_x)の測定に化学発光法、酸素の測定に磁気力方式・ジルコニア(Zirconia)方式・電極方式(ガルバニ電池(Galvanic cell)形)の3種類を用意することで、さまざまなニーズに応える汎用分析計を実現した。

基礎と原理

FA-5000/5200シリーズとVA-5000WMシリーズのNDIR法の検出器にはフローセンサ型検出器を使用している。一般に2つ以上の異なる原子からなる分子が赤外線照射を受けると、その分子の振動及び回転運動のエネルギー準位に基づき、その分子に固有な波長の赤外線を吸収する。NDIR法はこの吸収量を測定することにより定量分析を行うものである。赤外線の吸収量は吸収分子(測定成分ガス)の濃度に応じて変化する。この関係はEquation 1のランバート・ベールの法則により表される。

$$I = I_0 \exp(-\mu cd) \dots\dots\dots (1)$$

I_0 : 入射光強度

I : 透過光強度

c : 吸収分子(測定成分ガス)の濃度

μ : 吸収係数(分子と波長で決まる定数)

d : 吸収分子層(ガス層)の厚さ

I_0 , μ , d は測定成分ガス種や装置により決定される定数であるため、透過光強度 I を測定すれば、測定成分ガスの濃度 c がわかることになる。その際、共存成分による吸収影響を受けないように、検出器が応答する赤外線の波長選択が重要である。FA-5000/5200シリーズ、VA-5000WMシリーズでは、基本的に測定成分と同種のガスを封入するニューマチック型検出器を用いることで、検出器に優れた波長選択性を持たせている^[1]。Figure 4にNDIR測定モジュールの構成を示す。光源から出射された赤外線は、測定セルまたは比較セルを通り、集光ブロックで集光されて検出器へと入射する。この2つの赤外線を回転するチョッパで断続することによって、測定セルの透過光と比較セルの透過光とを交互に検出器に入射させている。

NDIR測定モジュールに用いられているフローセンサ型検出器の構造をFigure 5に示す。検出器は前室と後室の2つの受光室を持っており、その間に熱線抵抗によるフローセンサが設置されている。また受光室の中には、赤外線吸収を持つ測定成分と同種のガスが封入されている。測定セル内に測定成分ガスが存在すると、その濃度に応じた赤外線の吸収が起こり測定セルを透過する赤外線量が減少する。

一方、比較セルには赤外線を吸収しないガスが封入されているため、比較セルを透過する赤外線量は減少せず一定である。チョッパで測定セルの透過光と比較セルの透過光と

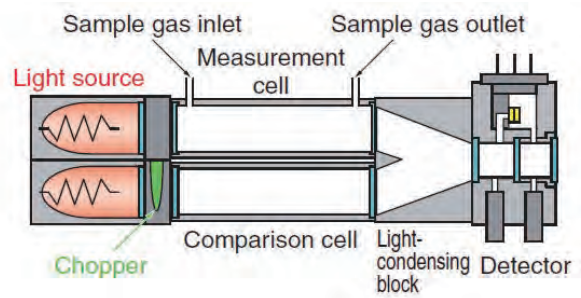


Figure 4 Structure of NDIR measurement module

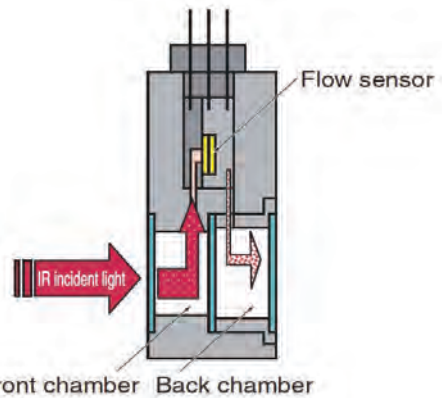


Figure 5 Structure of flow sensor type detector

を交互に検出器に入射させるため、交互に量の異なる赤外線が検出器に入射することになる。検出器の前室と後室のガスは、それぞれ赤外線の入射量の時間的変化により膨張と収縮を繰り返すが、前室のガスによる赤外線吸収で後室に入射する赤外線量は少なくなるため、検出器に入射する赤外線量の時間的変化に対応した膨張量と収縮量は前室のガスの方が大きい。その結果、前室と後室間にガスの移動が生じる。フローセンサは2つの熱線抵抗からなっており、外気温より高い温度になるよう電圧を印加した状態で前室から後室へのガスの流れの方向に対して垂直に設置されている。前室から後室へガスが流れた時には前室側抵抗の温度が下がり後室側抵抗の温度が上がる。逆に後室から前室へガスが流れた時には後室側抵抗の温度が下がり前室側抵抗の温度が上がる。

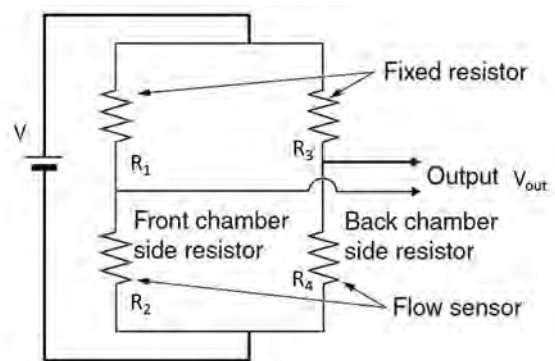


Figure 6 Bridge circuit

これらの温度変化による抵抗値の変化をFigure 6に示すブリッジ回路で電圧変化として検知することにより、赤外線吸収量の変化を交流電気信号として取り出している。

MPA-5000には圧力検出器を用いている。磁気力方式の圧力検出器の構造をFigure 7に示す。不均一な磁界中に常磁性の気体である酸素が存在すると、酸素は磁界の強い方に引き付けられ、その部分の圧力が上昇する。一般にその時の圧力上昇はEquation 2により表される。

$$\Delta P = \frac{1}{2} H^2 \cdot X \cdot C \dots\dots\dots (2)$$

- H：磁界の強さ
- X：常磁性体(酸素)の磁化率
- C：常磁性体(酸素)の濃度とキャリアガス中の酸素との濃度差

この圧力上昇をキャリアガスを用いて磁界外に取り出し、コンデンサマイクロフォンで検知して電気信号に変換する。キャリアガスには窒素または大気を使用している。交流駆動の電磁石で磁界を発生させており、信号は交流信号として処理されるため、安定した測定値を得ることができる。

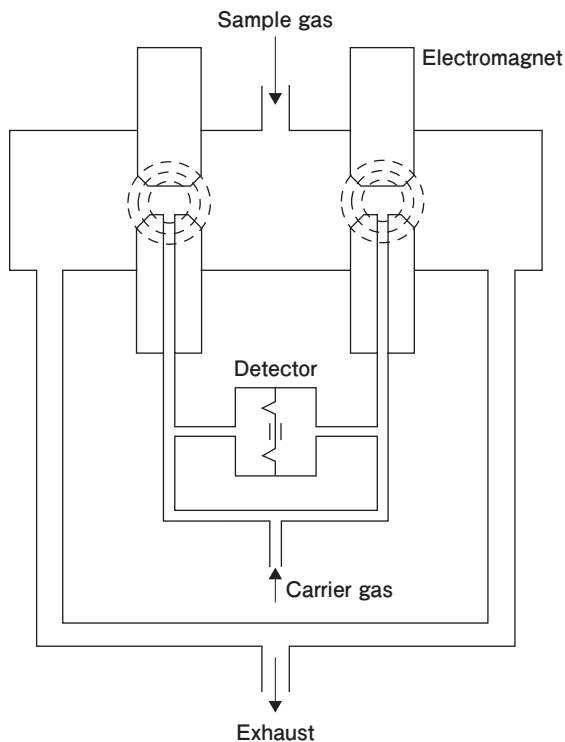


Figure 7 Pressure detector structure of magnetic force method

従来モデルからの改良点

FA-5000/5200シリーズ：周囲温度変化に対する測定値の精度向上

FA-5000/5200シリーズは測定原理にNDIR法を使用しており、測定値は周囲温度変化に伴うNDIR測定モジュールのセル中の測定成分ガスの温度変化、検出器の温度変化に大きく影響を受ける。従来モデルのFA-700, FA-3000ではNDIR測定モジュールの温度変化に伴う測定値変化を実験的に求め、その結果の平均値から補正式を算出し、その補正式で補正演算を行っている。しかし、この測定値変化は大きく、各NDIR測定モジュールの測定値変化のばらつきも大きいため補正演算の精度に課題があった。そこで本モデルFA-5000/5200シリーズでは、NDIR測定モジュールのセル部と検出器部の温度を一定に保つ機構を導入した。これにより、周囲温度変化に伴う測定値変化、各NDIR測定モジュールの測定値変化のばらつきが低減され、補正演算の精度を向上させることができた。

MPA-5000：大気キャリアガス仕様のラインアップ追加

MPA-5000は原理上、サンプルガス測定にキャリアガスが必要とする。従来モデルのMPA-3000ではキャリアガスとして窒素が使用されてしており、お客様で窒素ボンベを準備する必要があった。本モデルではお客様のご要望に応じてキャリアガスに大気を使用可能となり、ランニングコストの低減を実現した。

VA-5000WMシリーズ：測定現場における省スペース化

VA-5000WMシリーズはVA-5000シリーズのラインアップ追加として開発された^[2]。VA-5000シリーズは19インチパネルマウントのケースを採用しており、据付時にキャビネットを必要とする。一方、VA-5000WMシリーズはウォールマウントのケースを採用しているため据付時にキャビネットを必要とせず、壁に直接据え付け可能である。そのためVA-5000WMシリーズはスペースの限られた現場でも据付が可能であるため、お客様の現場における省スペース化が可能となった。

操作性の向上

FA-5000/5200シリーズ, MPA-5000, VA-5000WMシリーズでは視認性を重視し、5.7インチのカラー液晶画面とタッチパネルを採用した。従来は装置の外部にデータロガーなどの周辺装置が無ければガス濃度データの保存またはトレンドの確認ができなかったが、その周辺装置の準備には手間がかかる上にその設置スペースを必要とする。その改善としてFigure 8に示すトレンドグラフを液晶画面に表示することで、測定値のトレンドを視覚化し、瞬時に測定状態を把握できるようになった。またデータロギング機能を装

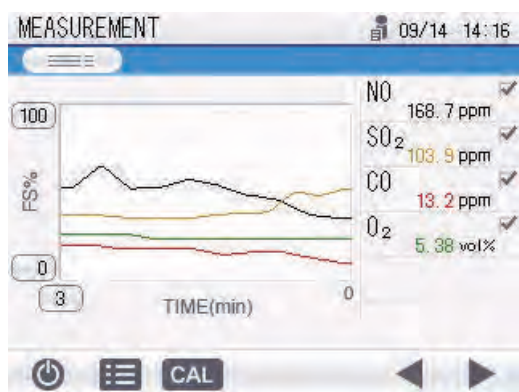


Figure 8 Trend graph of VA-5000WM series

置内に内蔵し、測定値・測定時刻・測定時のイベント情報をリアルタイムに記録することができ、USBメモリによりそのデータの抽出が可能となった。よって装置外部にデータロガーを設置する必要がなくなり、より簡易的にガスの計測を行うことができるようになった。

おわりに

鉄は主に自動車産業、建設業で使用されており人間が生きていく上で必要不可欠な材料である。現在、鉄はアジア圏を中心に生産されており、今後も継続的な生産が見込まれている。鉄の生産に伴いCO₂が排出されるが、日本の製造業におけるCO₂排出量は製鉄業が最も多く全体の約3割を占める^[3]。そのため日本では鉄の生産に伴うCO₂排出量の削減に取り組んでいる。MPA-5000は主に高品質な鉄を効率的に製造するために製鉄所で使用されており、FA-5000/5200シリーズは鉄の強度を高めるための金属硬化プロセスで使用されている。さらにVA-5000WMシリーズは燃焼排ガス中のCO₂を測定することができるため、鉄の生産に伴うCO₂排出量のモニタリングが可能である。上記は一例だが、これら分析計を通じて世界中の産業の発展を支え、地球環境保全に大いに貢献できると考える。

* 本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] 青木潤次, ニューマチック赤外検出器, Readout, 7, pp.64-71 (1993).
- [2] 水本一徳, マルチガス分析計VA-5000シリーズの開発, Readout, 50, pp.51-55(2018).
- [3] 環境省・経済産業省, 地球温暖化対策の推進に関する法律に基づく温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度による平成27(2015)年度温室効果ガス排出量の集計結果, pp.25(2018), https://ghg-santeikohyo.env.go.jp/files/result/h27/result_H27_20180831.pdf. (Referred on June 14th, 2019)



森田 淳

Jun MORITA

株式会社 堀場製作所
開発本部 環境プロセス開発部
Process & Environmental Instruments R&D Dept.
Research & Development Division.
HORIBA, Ltd.

HORIBA World-Wide Network

JAPAN

HORIBA, Ltd.

2, Miyanohigashi-cho, Kisshoin, Minami-ku, Kyoto, 601-8510, Japan
Phone : (81)75-313-8121 Fax : (81)75-321-8312
Biwako Factory

1-15-1, Noka, Otsu, Shiga, 520-0102, Japan
Phone : (81) 77-548-6130 Fax : (81) 77-548-6193

HORIBA Advanced Techno Co., Ltd.

31, Miyanonishi-cho, Kisshoin, Minami-ku, Kyoto, 601-8306, Japan
Phone : (81)75-321-7184 Fax : (81)75-321-7291

HORIBA STEC, Co., Ltd.

11-5, Hokodate-cho, Kamitoba, Minami-ku, Kyoto, 601-8116, Japan
Phone : (81)75-693-2300 Fax : (81)75-693-2350

Aso Factory

Torikokogyodanchi, 358-11, Koumaibata, Toriko, Nishihara-mura, Aso-gun, Kumamoto, 861-240, Japan
Phone : (81)96-279-2921 Fax : (81)96-279-3364

Fukuchiyama Technology Center

11-1 Miwa-cho Miwa, Fukuchiyama, Kyoto, 620-1445, Japan
Phone : (81) 773-59-2070 Fax : (81) 773-59-2074

HORIBA TECHNO SERVICE Co., Ltd.

2, Miyanohigashi-cho, Kisshoin, Minami-ku, Kyoto, 601-8305, Japan
Phone : (81)75-313-8125 Fax : (81)75-321-5647

BRAZIL

HORIBA Brasil Holding, Eireli

HORIBA Instruments Brasil, Ltda.

Rua Presbitero Plinio Alves de Souza, 645, parte A, Loteamento Multivias, Jardim Ermida II - Jundiá São Paulo - CEP 13.212-181 Brazil
Phone : (55)11-2923-5400 Fax : (55)11-2923-5490

TCA/HORIBA Sistemas de Testes Automotivos Ltda.

Rua Goiás 191 Vila Oriental, Diadema, São Paulo, Brazil CEP 09941-690
Phone : (55)11-4224-0200 Fax : (55)11-4227-3133

CANADA

HORIBA Canada, Inc.

Unit102, 5555 North Service Road Burlington, Ontario, Canada, L7L 5H7
Phone : (1)905-335-0234 Fax : (1)905-331-2362

London Office

347 Consortium Court, London, Ontario, Canada, N6E 2S8
Phone : (1)519-668-6920 Fax : (1)519-668-8437

U.S.A.

HORIBA United States Holding, LLC

HORIBA Americas Holding Incorporated

HORIBA Instruments Incorporated

9755 Research Drive, Irvine, CA 92618, U.S.A.
Phone : (1)949-250-4811 Fax : (1)949-250-0924

Albany Field Office

Suite 104, 58 Clifton Country Road, Clifton Park, NY 12065, U.S.A.
Phone : (1)-518-280-3675

Ann Arbor Office

5900 Hines Drive, Ann Arbor, MI 48108, U.S.A.
Phone : (1)734-213-6555 Fax : (1)734-213-6525

Austin Office

9701 Dessau Road, Suite 605, Austin, TX 78754, U.S.A.
Phone : (1)512-836-9560 Fax : (1)512-836-8054

Chicago, IL Field Office

554 Anderson Drive, Unit A Romeoville, IL 60446, U.S.A.
Phone : (1)815-372-9076

El Monte Field Office

9420 Telstar Ave, Suite 103 El Monte, CA 91731, U.S.A.
Phone : (1)626-542-3005

Houston Office

5390 Bay Oaks Drive, Pasadena, TX 77505, U.S.A.
Phone : (1)281-482-4334 Fax : (1)281-674-6058

Novato Field Office

359 Bel Marin Keys Blvd, #18, Novato, CA 94949, U.S.A.

HORIBA New Jersey Optical Spectroscopy Center

20 Knightsbridge Rd, Piscataway, NJ 08854, U.S.A.
Phone : (1)732-494-8660 Fax : (1)732-549-5125

Portland Office

7007 S.W. Cardinal Lane, Suite 185, Portland, OR 97224, U.S.A.
Phone : (1)503-624-9767 Fax : (1)503-968-3236

HORIBA Reno Technology Center

3740 Barron way Reno, Nevada 89511, U.S.A.
Phone : (1)775-358-2332 Fax : (1)775-358-0434

Sunnyvale Office

430 Indio Way, Sunnyvale, CA 94085, U.S.A.
Phone : (1)408-730-4772 Fax : (1)408-730-8975

Troy Office

2890 John R Road, Troy, MI 48083, U.S.A.
Phone : (1)248-689-9000 Fax : (1)248-689-8578

Atlanta Field Office

5871 Glenridge Drive, Suite 475, Atlanta, GA, U.S.A.

Beltsville Field Office

6800 Virginia Manor Rd., Beltsville, MD 20705, U.S.A.

MIRA North America Inc.

1400 North Woodward Avenue, Suites 250, Bloomfield Hills, MI 48304, U.S.A.

AUSTRIA

HORIBA (Austria) GmbH

Kaplanstrass 5, A-3430 Tulln, Austria
Phone : (43)2272-65225 Fax : (43)2272-65225-45

BELGIUM

HORIBA Europe GmbH

Antwerp Branch

Duwijkstraat 17, 2500 Lier, Belgium
Phone : (32)3-281-57-92 Fax : (32)3-230-06-95

CZECH REPUBLIC

HORIBA Czech

Prague Office

Prumyslova 1306/7, CZ-10200, Praha 10, Czech Republic
Phone : (420)246-039-265

Olomouc Factory

Zeleznici 512/7, 772 00 Olomouc, Czech Republic
Phone : (420)588-118-365, (420)588-118-393
Fax : (420)585-310-725

FRANCE

HORIBA Europe Holding SASU

Avenue de la Vauve - Passage Jobin Yvon - CS 45002 - 91120 Palaiseau, France

HORIBA FRANCE SAS

16-18, rue du Canal, 91165 Longjumeau Cedex, France
Phone : (33)1-69-74-72-00 Fax : (33)1-69-09-07-21

HORIBA Europe Research Center

Avenue de la Vauve - Passage Jobin Yvon CS 45002 - 91120 Palaiseau, France
Phone : (33)1-69-74-72-00 Fax : (33)1-69-31-32-20

Villeneuve d'Ascq Office

231 rue de Lille, 59650 Villeneuve d'Ascq, France
Phone : (33)3-20-59-18-00 Fax : (33)3-20-59-18-08

HORIBA ABX SAS

Parc Euromédecine, rue du Caducée, BP7290, 34184 Montpellier Cedex 4, France
Phone : 33(0)4-67-14-15-16 Fax : 33(0)4-67-14-15-17

GERMANY

HORIBA Europe GmbH / Oberursel Office

Hans Mess Strasse 6, D-61440 Oberursel, Germany
Phone : (49)6172-1396-0 Fax : (49)6172-1373-85

Darmstadt Office

Landwehrstrasse 55, D-64293, Darmstadt, Germany
Phone : (49)6151-5000-0 Fax : (49)6151-5000-3865

Dresden Office

Hugo-Junkers-Ring 1, 01109 Dresden, Germany
Phone : (49) 351-8896807 Fax : (49)-351-8896808

Hanover Office

Bayernstr. 29, D-30855 Langenhagen, Germany
Phone : (49)511-7410-95 Fax : (49)511-7410-53

Korschenbroich Office

Friedrich-Ebert-Str. 9-11, D-41352 Korschenbroich, Germany
Phone : (49)2161-47537-0

Leichlingen Office

Julius-Kronenberg-Str. 9, D-42799 Leichlingen, Germany
Phone : (49)2175-8978-0 Fax : (49)2175-897850

Munich Office

Waldmeisterserstr. 72-74/Robinienstr. 66, D-80935 Munich, Germany
Phone : (49)89-2444779-0 Fax : (49)89-2444779-10

Potsdam Office

Dennis-Gabor-Str. 2, D-14469 Potsdam, Germany
Phone : (49)3316-4900-70 Fax : (49)3316-4900-74

Stuttgart Office (Boeblingen)

Hans-Klemm-Str. 56, D-71034 Boeblingen, Germany
Phone : (49)7031-677-9440 Fax : (49)7031-677-9450

Stuttgart Office (Neuhausen)

Zabergaeustr. 3, D-73765 Neuhausen, Germany
Phone : (49)7158-933-800 Fax : (49)7158-933-899

Wolfsburg Office

Klauskamp, Heinenkap II 38444 Wolfsburg, Germany
Phone : (49)5361-38653-16 Fax : (49)5361-38653-24

HORIBA Jobin Yvon GmbH

Neuhofstrasse 9, D_64625, Bensheim, Germany
Phone : (49)89-62-51-84-750 Fax : (49)89-62-51-84-7520

HORIBA FuelCon GmbH

Steinfeldstraße 1, 39179 Barleben, Germany
Phone : (49)39203-514-400 Fax : (49)39203-514-409

TOCADERO Analytics AG

Johann-Hittorf-Str. 8 12489 Berlin Germany

ITALY

HORIBA ITALIA Srl

Via Luca Gaurico 209, 00143 Roma, Italy
Phone : (39)6-51-59-22-1 Fax : (39)6-51-96-43-34

Torino Office

Via Ferroggio, 30, 10151, Torino, Italy
Phone : (39)1-19-04-0601 Fax : (39)1-19-00-0448

HORIBA ABX SAS

Italy Branch

Viale Luca Gaurico 209/211, 00143 Roma, Italy
Phone : (39)6-51-59-22-1 Fax : (39)6-51-96-43-34

MAURITIUS

MIRA Engineering Service Mauritius Ltd.

9th Floor, Orange Tower, Cybercity, Ebene, Mauritius

NETHERLANDS

HORIBA Europe GmbH

Netherlands Branch

Science Park Eindhoven, 5080 (Industrial park "Ekkersrijf") 5692 EA Son Netherlands
Phone : (31)40-2900240 Fax : (31)40-2900624

POLAND

HORIBA ABX Sp. z o. o.

ul. Putawska 182 02-670 Warszawa, Poland
Phone : (48)22-673-2022 Fax : (48)22-673-2026

PORTUGAL

HORIBA ABX SAS

Portugal Branch

Alfrapark Estrada de Alfragide n° 67, Edificio F - Piso 0 Sul, 2610-008 Amadora, Portugal
Phone : (35)12-14-72-17-70 Fax : (35)12-14-72-17-89

ROMANIA

HORIBA (Austria) GmbH

Romania Branch

B-dul.Republicii, nr. 164, Etaj Parter, Birourile nr. 3 si 4, Pitesti, 110177, Judetul Arges, Romania
Phone : (40)348-807117 Fax : (40)348-807118

RUSSIA

HORIBA OOO

Altufievskoe shosse, 13, building 5, 127106, Moscow, Russia
Phone : (7)495-221-87-71 Fax : (7)495-221-87-68

Zelenograd Office

Office 106, 2nd West st., 1, build 1, 124460, Zelenograd city, Moscow, Russia
Phone : (7)499-995-09-54

SPAIN

HORIBA MIRA SPAIN, S.L.

Calle Oficios, nave 22, 04620 Vera (Almeria), Spain
Phone : (34)-950-39-11-53

HORIBA ABX SAS

Spain Branch

Calle Apolonio Morales. Num.6(Bajos), 28036 Madrid, Spain
Phone : (34)91-353-30-10 Fax : (34)91-353-30-11

SWEDEN

HORIBA Europe GmbH

Sweden Branch (Gotehburg)

Grimboasen 10 A, S-417 49 Gothenburg, Sweden
Phone : (46)10-161 1500 Fax : (46)10-161 1503

Sweden Branch (Sodertalje)

Sydhamnsvagen 55-57, SE- 15138 Sodertalje, Sweden
Phone : (46)8-550-80701 Fax : (46)8-550-80567

TURKEY

HORIBA Europe GmbH

Istanbul Office

Küçükbakkalköy Mah. Kayışdağı Cad., Flora Residence No:3/2504, 34750 Ataşehir/Istanbul, Turkey
Phone : (90)216-572-1166 Fax : (90)216-572-1167

HORIBA World-Wide Network

United Kingdom

HORIBA UK Limited

HORIBA UK Finance Limited

Kyoto Close, Moulton Park, Northampton, NN3 6FL, United Kingdom

Phone : 44(0)1604 542500 Fax : 44(0)1604 542699

HORIBA Jobin Yvon IBH Ltd.

Kyoto Close, Moulton Park, Northampton, NN3 6FL, United Kingdom

Phone : (44)141-229-67-89 Fax : (44)141-229-67-90

HORIBA Test Automation Ltd.

Brook Court, Whittington Hall, Worcester WR5 2RX, United Kingdom

Phone : (44)1905-359359 Fax : (44)1905-359332

HORIBA MIRA Limited

HORIBA MIRA Certification Limited

MIRA Int'l Limited

MIRA Land Limited

MIRA Service Limited

MIRA Technology Park Limited

Watling Street, Nuneaton, Warwickshire, CV10 0TU, United Kingdom

Phone : (44)24-7635-5000

HORIBA MIRA Limited

Quatro Park

Unit 1, Quatro Park, Paycocke Road, Basildon, Essex, SS14 3GH, United Kingdom

Phone : (44) 1268-290100

CHINA

HORIBA INSTRUMENTS (SHANGHAI) Co., Ltd.

No.200, Taitao Road, Anting Town, Jiading District, Shanghai, 201814, China

Phone : (86)21-6952-2835 Fax : (86)21-6952-2823

HORIBA (China) Trading Co., Ltd.

Unit D, 1 Floor, Building A, Synnex International Park, 1068 West Tianshan Road, Shanghai, 200335, China

Phone : (86)21-6289-6060 Fax : (86)21-6289-5553

Beijing Branch

12F, Metropolis Tower, No. 2, Haidian Dong 3 street

Beijing 100080, China

Phone : (86)10-8567-9966 Fax : (86)10-8567-9066

Guangzhou Branch

Room 1611/1612, Goldlion Digital Network Center,

138 Tiyu Road East, Guangzhou 510620, China

Phone : (86)20-3878-1883 Fax : (86)20-3878-1810

Shanghai Service Center

Room 303, No.84, Lane887, Zu-Chong-Zhi Road,

Zhangjiang Hi-tech Park, Shanghai, 201203, China

Phone : (86)21-5131-7150 Fax : (86)21-5131-7660

Shanghai Technical Center

No.200, Taitao Road, Anting Town, Jiading District,

Shanghai, 201814, China

Phone : (86)21-6289-6060 Fax : (86)21-6289-5553

HORIBA (China) Co., Ltd.

Room 1604, Building 1, No.185 Moyu Road, Anting

Town, Jiading District, Shanghai, China, 201805

Phone : (86)21-6289-6060 Fax : (86)21-6289-5553

HORIBA Technology (Suzhou) CO.,LTD.

No.1 building, Industry park, No.101 Chenmenjing

Rd, Taicang, Jiangsu, China (215400)

Beijing HORIBA METRON Instruments Co., Ltd.

Chaoyang District, Bei Yuan Road 40, Beijing,

100012, China

Phone : (86)10-8492-9402 Fax : (86)10-8492-7216

MIRA China Ltd.

BSuite 501, Block B, Hongqiao Sunnyworld

No. 1226 South Shenbin Road

Shanghai, 201106, China

Phone : (86)21-6220-6377 Fax : (86)21-6220-6379

INDIA

HORIBA India Private Ltd.

246, Okhla Industrial Estate, Phase 3, New Delhi, 110020, India

Phone : (91)11-4646-5000 Fax : (91)11-4646-5020

Bangalore Office

No.55,12th Main, Behind BDA Complex, 6th sector, HSR Layout, Bangalore South, Bangalore-560102, India

Phone: (91)80-4127-3637

Chennai Office

No.9, 01&02 Floor, Ganapathy Colony, Thiru-Vi-Ka Industrial Estate, Guindy, Chennai, 600032, India

Phone : (91)44-42077899

Kolkata Office

EK Tower/6th Floor/Office-4A, Action Area-IID, Newtown, Pin Code 700161, India

Haridwar Factory

Plot No. 26, Sector-7, IIE, SIDCUL, Haridwar, Uttarakhand - 249403, India

Phone : (91)1334-239139

Technical Center

D-225, Chakan MIDC Phase-II, Bhamboli Village, Pune-410501, India

Phone : (91)02135-676000

INDONESIA

PT HORIBA Indonesia

JL. Jalur Sutera Blok 20A, No. 16-17, Kel. Kunciran, Kec. Pinang Tangerang 15144, Indonesia

Phone : (62)21-3044-8525 Fax : (62)21-3044-8521

KOREA

HORIBA KOREA Ltd.

25, 94-Gil, Iljik-Ro, Manan-Gu, Anyang-Si, Gyeonggi-Do, 13901, Korea

Phone : (82)31-296-7911 Fax : (82)31-296-7913

Ulsan Office

613, Doosan We've the Zenith, 1877, Sinjeong-Dong, Nam-Gu, Ulsan-Si, 44679, Korea

Phone : (82)52-275-0122 Fax : (82)52-276-0136

HORIBA STEC KOREA, Ltd.

98, Digital valley-ro Suji-gu, Yongin-si Gyeonggi-do 16878, Korea

Phone : (82)31-8025-6500 Fax : (82)31-8025-6599

HORIBA MIRA, Ltd.

Korea Branch Office

25, 94-Gil, Iljik-Ro, Manan-Gu, Anyang-Si, Gyeonggi-Do, 13901, Korea

Phone : (82)70-4689-0680 Fax : (82)31-296-7913

PHILIPPINE

HORIBA INSTRUMENTS (SINGAPORE) PTE LTD.,

MANILA Office

27/F Tower 2, Enterprise Center 6766, Ayala Avenue cor Paseo de Roxas, Makati City, Philippines, 1226

Phone : (65)6-745-8300 Fax : (65)6-745-8155

West Office

83 Science Park Drive #02-02A, The Curie Singapore 118258

Phone : (65)6-908-9660

SINGAPORE

HORIBA Instruments (Singapore) Pte. Ltd.

3 Changi Business Park Vista #01-01 Akzonobel House, Singapore, 486051

Phone : (65)6-745-8300 Fax : (65)6-745-8155

West Office

83 Science Park Drive #02-02A, The Curie Singapore 118258

Phone : (65)6-908-9660

TAIWAN

HORIBA Taiwan, Inc.

8F.-8, No.38, Taiyuan St. Zhubei City, Hsinchu County 30265, Taiwan (R.O.C.)

Phone : (886)3-5600606 Fax : (886)3-5600550

Tainan Office

1F., No.117, Chenggong Rd, Shanhua, Township, Tainan Country 741, Taiwan (R.O.C.)

Phone : (886)6-583-4592 Fax : (886)6-583-2409

THAILAND

HORIBA Holding (Thailand) Limited

393 395 397 399 401 403 Lad Ya Road, SomdetChaophraya, Klongsan District, Bangkok 10600, Thailand

Phone : (66)2-861-59-95 Fax : (66)2-861-52-00

HORIBA (Thailand) Ltd.

393 395 397 399 401 403 Lad Ya Road, SomdetChaophraya, Klongsan District, Bangkok 10600, Thailand

Phone : (66)2-861-59-95 ext.123 Fax : (66)2-861-52-00

East Office

850/7 Soi Lat Krabang 30/5, Lat Krabang Road, Lat Krabang, Bangkok 10520, Thailand

Phone : (66)0-2-734-4434 Fax : (66)0-2-734-4438

VIETNAM

HORIBA Vietnam Company Ltd.

Lot 3 and 4, 16 Floor, Detech Tower II, No.107 Nguyen Phong Sac Street, Dich Vong Hau Ward, Cau Giay District, Hanoi, Vietnam

Phone : (84)-24-3795-8552 Fax : (84)-24-3795-8553

Ho Chi Minh Branch Office

Room 8.6-8th Floor, Le Meridien Building, 3c Ton Duc Thang Street, Ben Nghe ward, District 1, Ho Chi Minh City, Vietnam

Phone : (84)28-7305-4492 Fax : (84)28-6287-6269

Readout HORIBA Technical Reports October 2019 No.53

発行日 2019年10月17日
発行人 青山 剛士
発行元 株式会社 堀場製作所
〒601-8510 京都市南区吉祥院宮の東町2番地

<http://www.horiba.com/jp/publications/readout/>



DTP・製版・印刷・製本

株式会社 写真化学

<Readout編集委員会>

委員長	青山 剛士
副委員長	野村 聡
編集委員	木下 明生, 巖 桂二郎, 織田 香織
編集局	中田 靖, 坂本 淳一, 濱上 郁子

お問い合わせ先

株式会社 堀場製作所 開発本部 開発企画センター

Tel:075-313-8121 (代)

e-mail: readout@horiba.co.jp

HORIBA

Explore the future



この印刷物は、EPAのシムルバー基準に適合し、
地球環境に配慮した印刷方法にて作成されています。
EPA：環境保護印刷推進協議会
<http://www.e3pa.com>