

基于电化学阻抗谱及弛豫时间分布的锂电池异常识别与诊断

袁永军^{1,2}, 郭玄², 王学远¹, 姜波¹, 戴海峰¹, 魏学哲¹

(1. 同济大学汽车学院, 上海 201804; 2. 上海炙云新能源科技有限公司, 上海 201823)

摘要: 针对锂离子电池模组中单体电池的状态识别与诊断问题, 基于电化学阻抗谱和弛豫时间分布曲线, 引入仿射传播(AP)聚类算法进行电池模组异常识别, 并与基于密度噪声鲁棒空间聚类(DBSCAN)算法进行对比, 以 10 个正常样本、多个异常样本进行识别。结果表明, AP 聚类算法在精度、鲁棒性、参数敏感性方面(数据重叠、密度不均等)表现得比 DBSCAN 算法更好。另外, 引入极端梯度提升(XGBoost)回归器, 在存储该电池对应的一定数据后, 对同样电池进行识别时, 直接通过 XGBoost 回归器进行电池异常诊断。结果表明, 异常检出率为 100%, 异常种类识别准确率超过 92%。最后, 提出了包括数据收集、特征提取、识别诊断等关键环节的电池模组异常识别和诊断系统。

关键词: 锂离子电池, 异常诊断; 电化学阻抗谱, 弛豫时间分布, 仿射传播聚类算法

中图分类号: U463.63

文献标志码: A

Identification and Diagnosis of Abnormal Lithium-ion Batteries Based on Electrochemical Impedance Spectroscopy and Distribution of Relaxation Time Analysis

YUAN YongJun^{1,2}, GUO Xuan², WANG XueYuan¹,
JIANG Bo¹, DAI HaiFeng¹, WEI XueZhe¹

(1. School of Automotive Studies, Tongji University, Shanghai 201804, China; 2. Shanghai Zhiyun New Energy Technology Co., Ltd., Shanghai 201823, China)

Abstract: To address the issues of state identification and diagnosis for cells in lithium-ion battery modules, this paper proposes using electrochemical impedance spectroscopy and distribution of relaxation time curves with the affinity propagation (AP) clustering algorithm for abnormal identification of battery modules. The AP algorithm is compared with the density-based spatial

clustering of applications with noise (DBSCAN) algorithm using 10 normal samples and multiple abnormal samples. The results show that AP performs better than DBSCAN in terms of accuracy, robustness, and parameter sensitivity (overlapping data, uneven density, etc.). In addition, the extreme gradient boosting (XGBoost) classifier is introduced, and after storing a certain amount of data corresponding to the battery, the same battery can be directly diagnosed for abnormalities through the XGBoost classifier. The anomaly detection rate is 100%, and the accuracy of identifying anomaly types exceeds 92%. Finally, a battery module abnormal identification and diagnosis system is proposed, which includes key steps such as data collection, feature extraction, identification, and diagnosis.

Keywords: lithium-ion battery; electrochemical impedance spectroscopy; distribution of relaxation time; abnormality; affinity propagation clustering algorithm

在储能和新能源汽车领域, 锂离子电池虽然在电池成组时可以充分保证电池之间的一致性, 但是在使用过程中却会发生一致性恶化的情况^[1]。这种一致性的恶化除了最初的生产环节带来的工艺、结构、材料等细微差别导致以外, 另一个重要原因是后期使用过程中电池热管理、负荷均衡等方面的长期不均匀性累积导致, 又或是电池组连接部件等的机械故障所致。通常情况下, 电池组内单体电池的一致性异常可以分为状态异常和故障异常两类。其中, 状态异常主要包括状态老化(SOH)、温度、荷电状态(SOC)异常, 而故障异常主要包括连接器(busbar)等异常。目前在电池管理系统(battery management system, BMS)中缺乏有效的异常识别方法, 从而给电池运行和维保造成隐患^[2]。

电化学阻抗谱(EIS)是电池内部电极过程特性的重要表征量,可以表征电池内部过程的演变,在电池的寿命、安全和异常分析中具有巨大的应用潜力^[3]。近年来,伴随着机器学习的兴起,EIS的应用得到了更加广泛的研究^[4-7],这为基于EIS进行电池异常识别和诊断奠定了基础。此外,在进行电池EIS分析时,弛豫时间分布(DRT)方法可以获取EIS中等效时间常数的分布规律^[8],这可用于进一步分析电池内部电极过程特性。围绕锂离子电池异常识别问题,本文通过分析不同类型异常在EIS和DRT上的表现规律和特征,通过机器学习的方法对上述异常进行识别,并基于特征进行异常诊断。

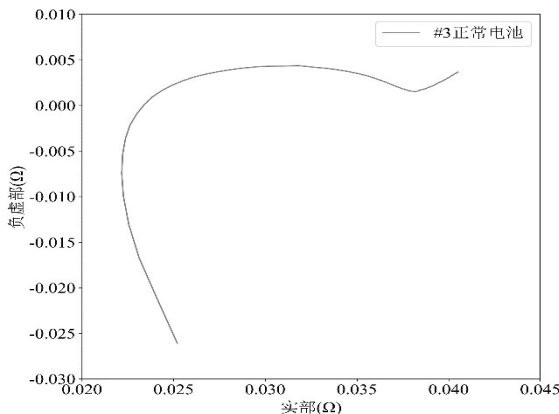


图1 EIS 特征
Fig.1 EIs features

1.1 特征分析

电池的EIS对状态变化和故障发生比较敏感且呈现不同的变化规律,相应的DRT的结果也会发生变化。一般来说,电池的EIS随着SOH的降低在全频段阻抗会增大,随着温度的升高在全频段阻抗会减小,随着SOC的降低在中低频阻抗会增大。从EIS得到的DRT则呈现不同峰值升高或者降低的变化规律。通过文献总结^[9],表1给出了电池EIS和DRT受到状态和故障影响的异常变化规律。

表1 电池EIS和DRT异常变化规律
Tab.1 Summary of Changes in Battery EIS and DRT Affected by States and Faults

异常模式	EIS 特征	DRT 特征
SOH异常降低	全频段增大	不同时间常数峰位增高
温度异常升高	全频段减小	不同时间常数峰位降低
SOC异常降低	中低频增大	中长时间尺度峰位增高
SOC异常升高	中低频减小	中长时间尺度峰位降低
Busbar异常	欧姆电阻增大或不稳定	—

1 不同异常情况下的特征分析及数据集构建

正常的2.85 Ah的三星18650三元锂离子电池的EIS与DRT特征如图1、图2所示,图中数据是以0.1~10.0 kHz频率下的激励电流作为输入,得到的电池反馈电压数据。从图1可以看出,对于该类型电池,正常的EIS高频部分(≥ 100 Hz)呈小圆弧,中低频部分(0.1~100 Hz)形状呈大圆弧。从图2可以看出,采用DRTtools工具处理EIS数据得到DRT曲线,DRT在两段圆弧所处的时间常数范围内呈现高度不同的峰值。

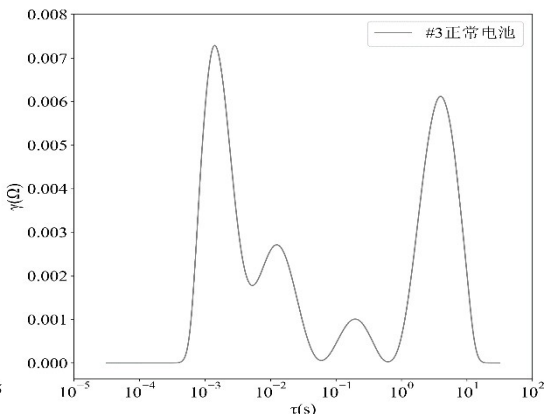


图2 DRT 特征
Fig.2 DRt features

1.2 数据集构建

为了能够建立电池状态和异常识别的诊断算法,首先需要建立数据集。数据集利用12块18650三元锂电池实验得出,其中正常数据10条(50% SOC),异常数据各4条,具体如下:

- (1) 12个电池中抽取10个,充放电至50% SOC,如图3所示。
- (2) 根据SOH、温度、SOC、Busbar异常与正常电池的差异特性实验生成各类异常EIS数据4条。
- (3) 图4—图7为异常数据集,共包含30条EIS,各自具有特性如下:① SOC降低异常,当SOC小于正常电池时,表现为高频部分阻抗相同,中低频部分阻抗要大于正常电池(见图4);② SOH降低异常,当电池寿命衰减异常时,表现为整体阻抗特别是虚部阻抗相对正常电池偏大(见图5);③ Busbar异常,当Busbar异常时,表现为Busbar接触电阻的异常,通常表现为欧姆电阻变大(见图6),即EIS整体向右偏移;④ 温度异常,当电池内部温度过高时,其阻抗相对正常工况变小(见图7)。

异常诊断模型中的数据标签设置为:正常 ①、SOC 异常 ①、SOH 异常 ②、Busbar 异常 ③、温度异常 ④。在特征方面,本文从 EIS 与 DRT 提取特征,具体为从 EIS 提取实部、虚部(见图 1),从 DRT

将阻抗特征转换为时域时间常数分布特征;以 τ 为横轴、 γ 为纵轴(见图 2)得到时间特征曲线。因此,模型的数据输入特征分别为阻抗谱的实部、虚部、阻抗模以及 DRT 曲线的 τ 、 γ 。

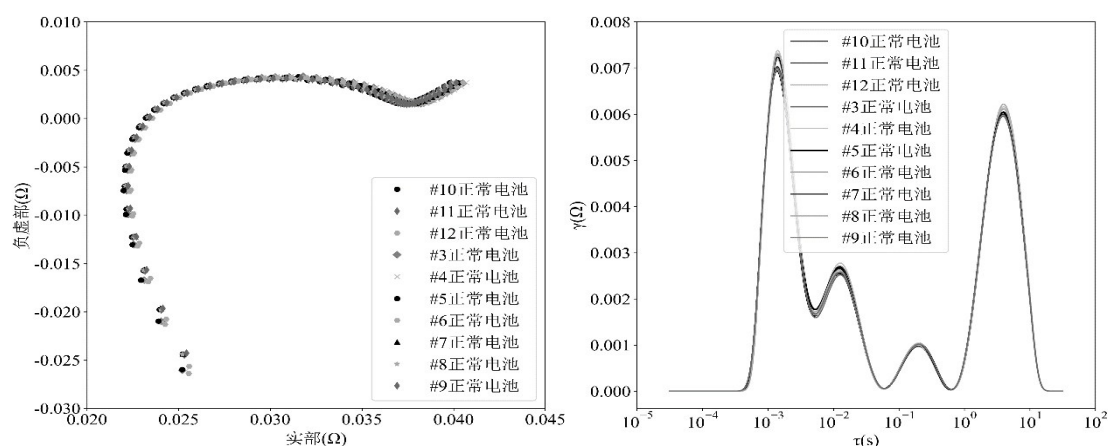


图3 EIS与DRT正常特征

Fig.3 Normal features

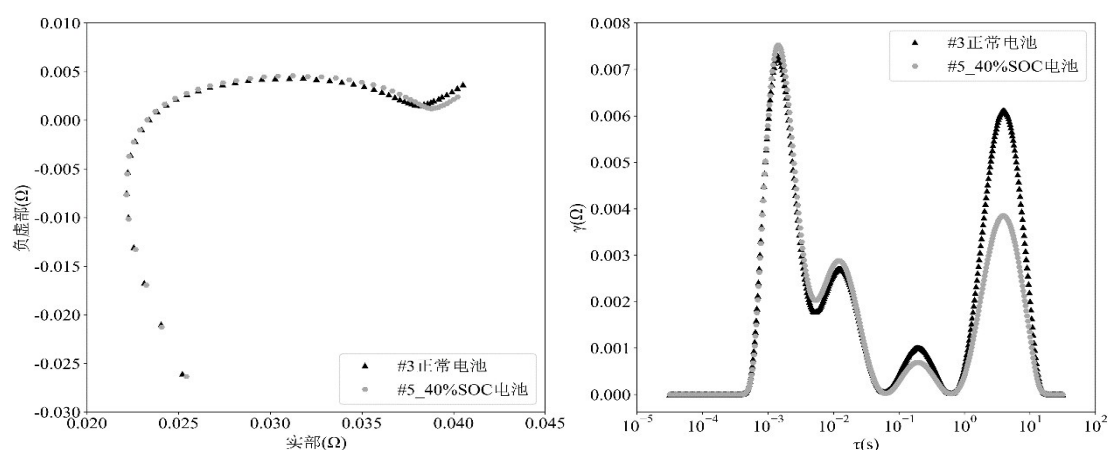


图4 SOC降低异常特征

Fig.4 Abnormal features of low SOC

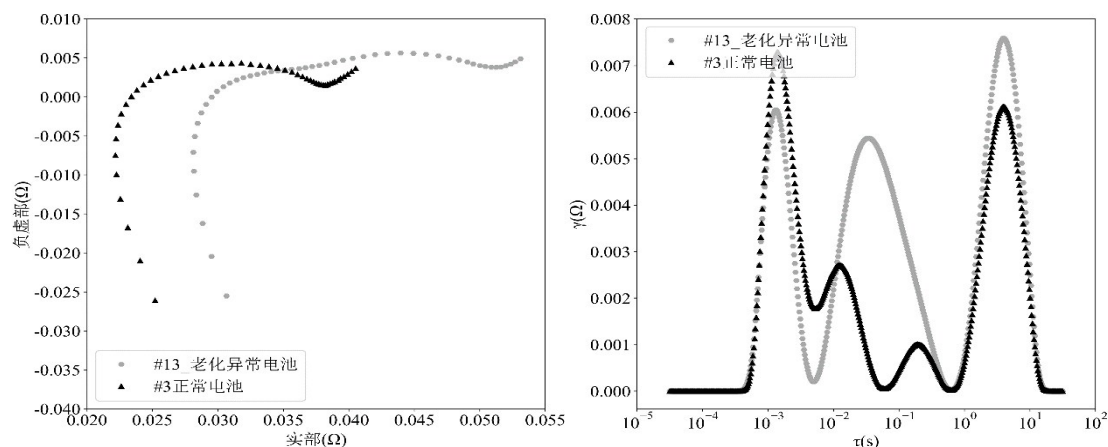


图5 SOH降低异常特征

Fig.5 Abnormal features of low SOH

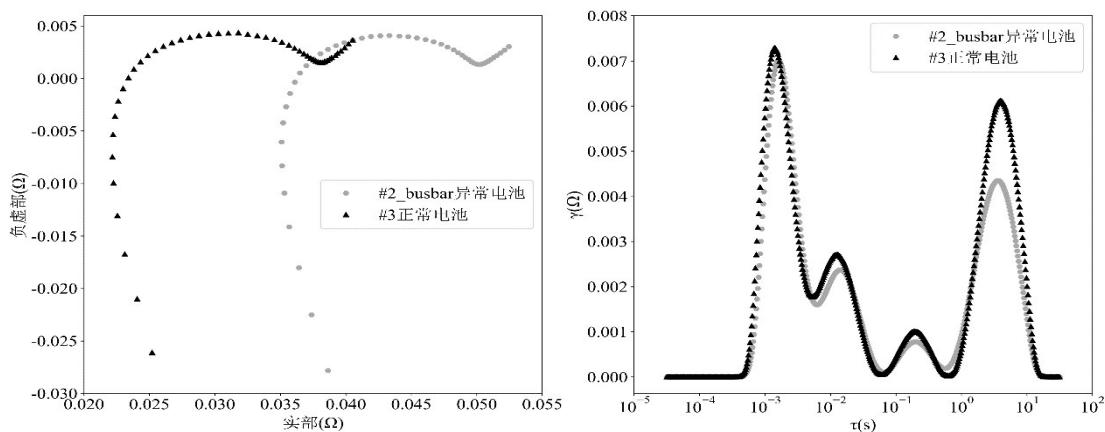


图6 Busbar异常特征

Fig.6 Busbar abnormal features

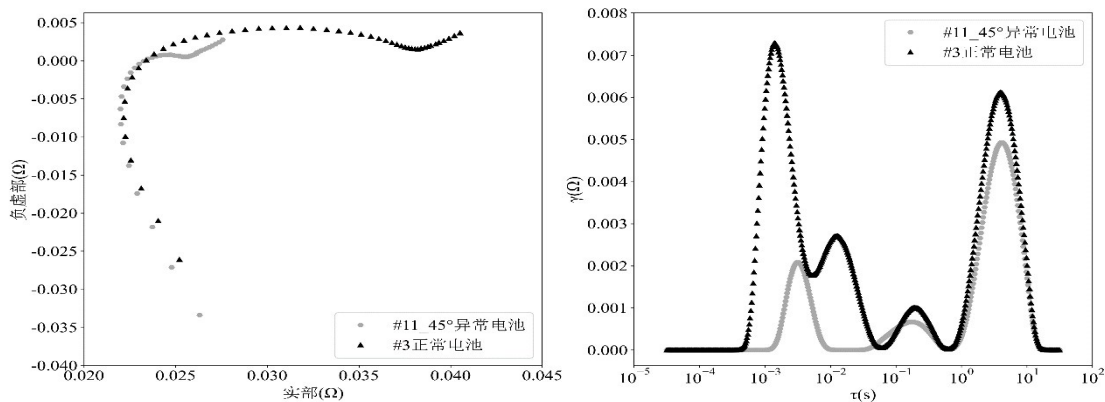


图7 温度升高异常特征

Fig.7 Abnormal features of high temperature

2 不同异常模式的识别和诊断方法

2.1 基于仿射传播聚类(AP)的异常模式识别方法

对于包含多个单体的电池组,识别异常的单体可以等效为聚类,通过聚类方法将异常电池从多个电池单体的数据特征中筛选出来。图8为电池异常识别AP算法示意图。该方法在初始化时视所有数据为可能的聚类中心,利用数据之间的相似性,连接各数据形成网络,即建立相似性矩阵,并且数据之间依靠连线传递吸引与归属两种衡量信息,其形成各自的信息矩阵并传递更新(迭代)以及计算出聚类中心^[10]。在模型训练时,正常电池数据聚类结果为一种,否则视为存在异常,其主要聚类公式如下。

吸引力迭代公式:

$$R_{t+1}(i, k) = (1 - \lambda)R_t(i, k) + \lambda A_t(i, k)$$

其中:

$$R_{t+1}(i, k) = \begin{cases} S(i, k) - \max_{j \neq k} \{A_t(i, j) + R_t(i, j)\}, & \text{若 } i \neq k \\ S(i, k) - \max_{j \neq k} \{S_t(i, j)\}, & \text{若 } i = k \end{cases} \quad (1)$$

归属感迭代公式:

$$A_{t+1}(i, k) = (1 - \lambda)A_t(i, k) + \lambda R_t(i, k)$$

其中:

$$A_{t+1}(i, k) = \begin{cases} \min \left\{ 0, R_{t+1}(k, k) + \sum_{j \in (i, k)} \max \{0, R_{t+1}(j, k)\} \right\}, & \text{若 } i \neq k \\ \sum_{j \neq k} \max \{0, R_{t+1}(j, k)\}, & \text{若 } i = k \end{cases} \quad (2)$$

2.2 基于极端梯度提升(XGBoost)的异常模式诊断方法

异常模式的诊断等效为分类。在这里采用精度和速度较好的极端梯度提升(XGBoost)模型作为分类模型^[11],图9所示为电池异常诊断示意图。

其基本思想为树结构模型,是一种基于Boosting集成思想的加法模型,其训练时使用前向传播算法学习特征,每次迭代相当于建立一棵决策树,并学习前t棵决策树的分类残差,因此其最终结果为多棵决策树构成的组合(集成)分类器依次链接(当前模型的输入或者训练结果关联前一个决策树)产生。建立模型时设置其使用Softmax分类方式进行多分类,使用KFold对折交叉训练,该方法

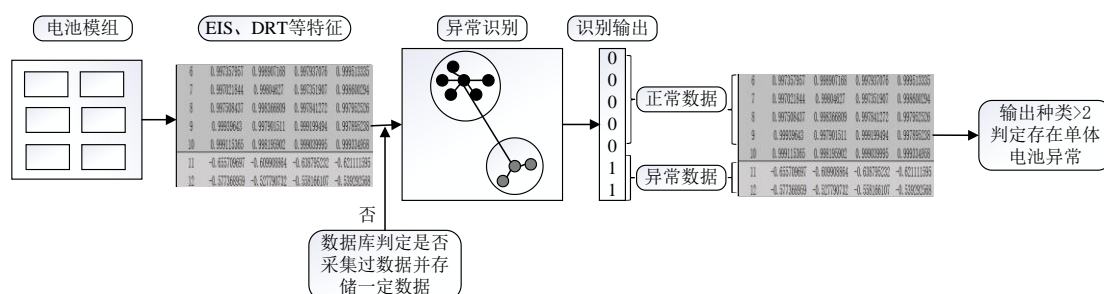


图8 电池异常识别AP算法示意图

Fig.8 Schematic diagram of AP algorithm recognition

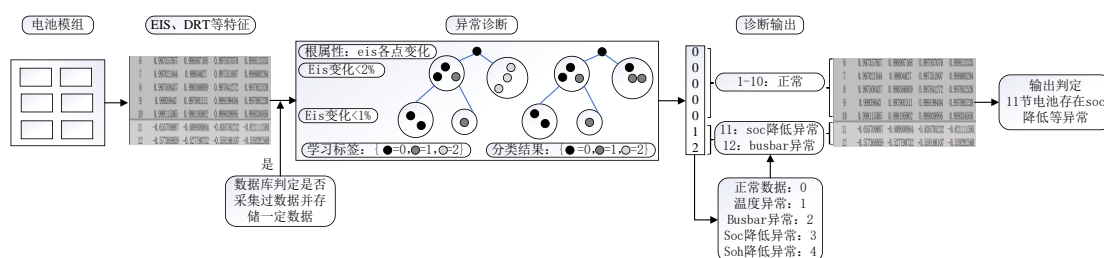


图9 XGBoost算法诊断示意图

Fig.9 Schematic diagram of XGBoost algorithm diagnosis

思想是将数据集分裂N次(样本个数),其中数据集每次分裂的训练集为t-1个样本,第t个样本为测试集。根据收集的异常数据进行标注分类并训练模型,输出判定是否异常并给出异常种类。主要分类公式如下,其公式结果是由多棵树组合

$$\hat{y} = \sum_{k=1}^K f_k(x_i), f_k \in F$$

其中:

$$F = \{ f(x) = w_{g(x)} \} (q: R^m \rightarrow T, w \in R^T)$$

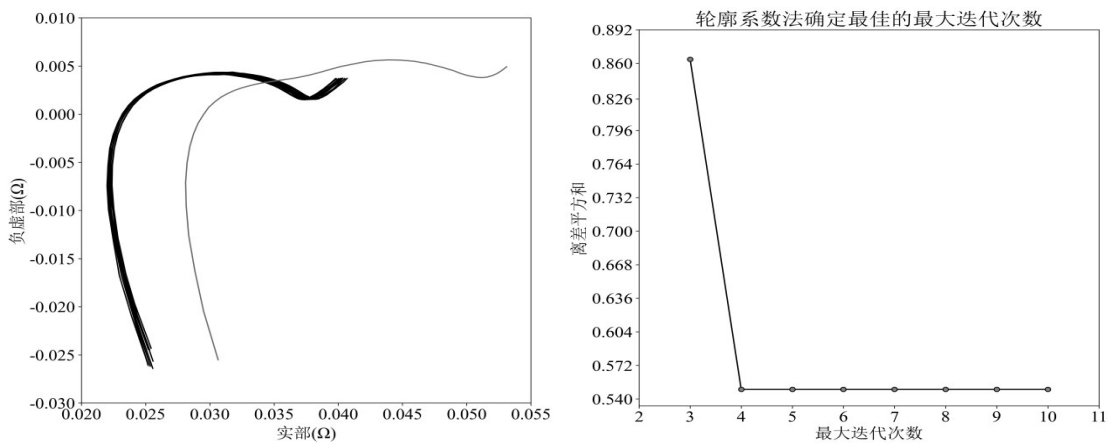


图 10 老化异常识别结果
Fig.10 Aging anomaly identification results

表 2 老化异常识别的最佳迭代次数确认

Tab.2 Confirmation of the optimal number of iterations for identifying aging anomalies

最大迭代次数	平均轮廓系数	聚类结果	聚类中心样本
3	0.863829	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1]	[5, 10]
4	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]
5	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]
6	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]
7	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]
8	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]
9	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]
10	0.549208	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2]	[3, 8, 10]

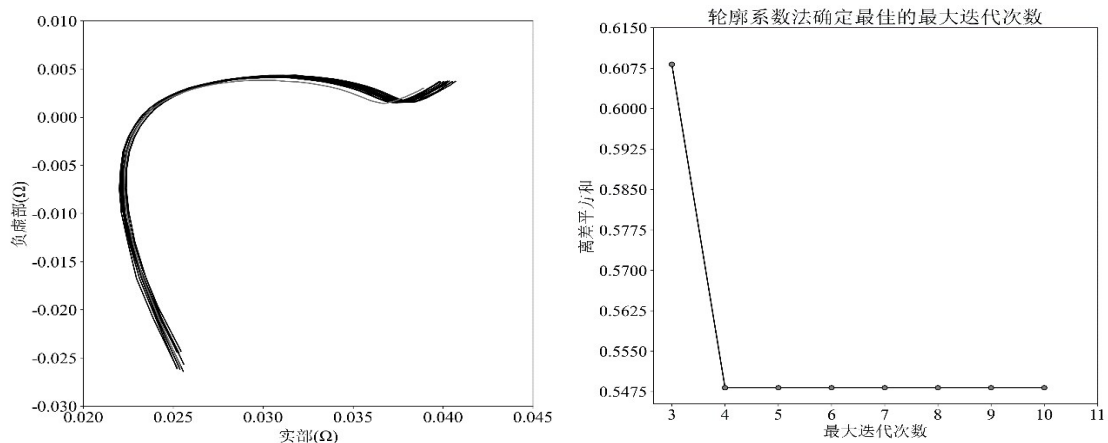


图 11 #6_60% 高 SOC 异常识别结果
Fig.11 #6_60% high SOC anomaly identification results

3.1.3 三个异常样本+10个正常样本识别情况

图 18 及表 5 显示 AP 算法在三个异常数据情况下,能识别出大于两类数据,并且验证了识别过程中可以以评估方法作为辨识模型参数和识别结果的重要指标。

3.1.4 10 个正常样本的识别情况

仅包含正常电池模组的数据,利用轮廓系数法

的值不变且迭代次数最小不为 1 开始,则可判定该组电池无异常,如图 19 所示。

在这里引入 DBSCAN 聚类模型与之对比^[12],其训练参数中粒子半径为 0.05,聚类结果正确。聚类结果为 2(见图 20),图 21(左)为 3 个异常数据的识别结果,可以看出在不改变粒子半径情况下,其无法正确识别出异常数据,将粒子半径改为 0.005 时即图

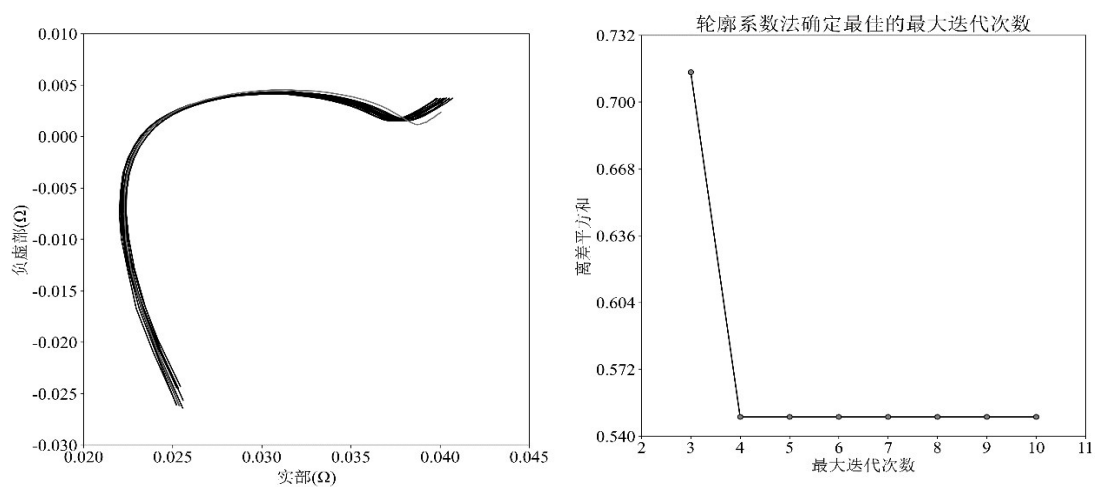


图 12 #5_40% 低 SOC 异常识别结果

Fig.12 #5_40% low SOC anomaly identification results

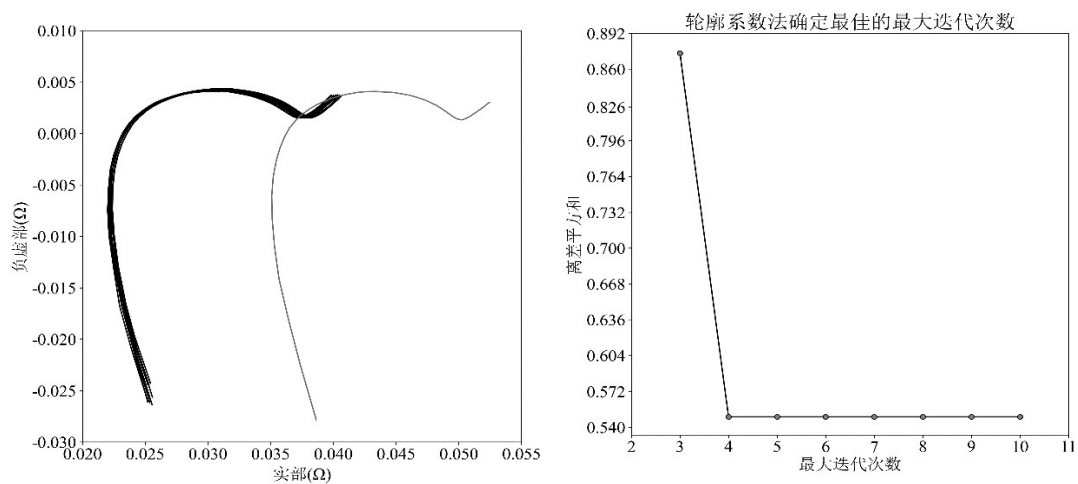


图 13 #2 Busbar 异常识别结果

Fig.13 #2 Busbar anomaly identification results

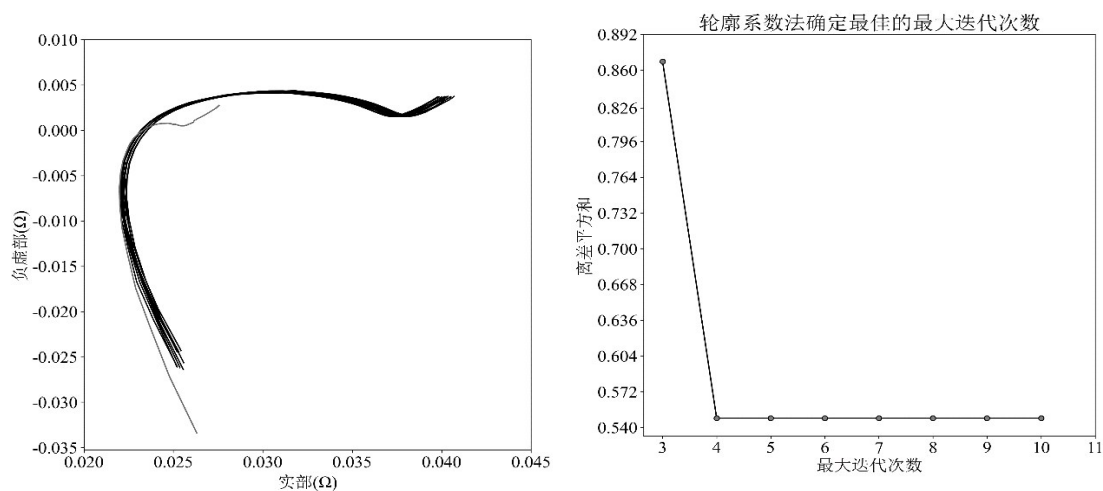


图 14 #11_45° 高温异常识别结果

Fig.14 #11_45° high temperature anomaly identification results

表3 其余异常识别的最佳迭代次数确认(1个异常与10个正常)

Tab.3 Confirmation of the optimal number of iterations for identifying other anomalies
(1 Anomaly And 10 Normal)

识别种类	最大迭代次数	平均轮廓系数	聚类结果	聚类中心样本
正常+老化	3	0.863 829	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1]	[5, 10]
正常+busbar	3	0.874 273	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1]	[5, 10]
正常+低SOC	3	0.714 343	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1]	[5, 10]
正常+高SOC	3	0.608 650	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1]	[5, 10]

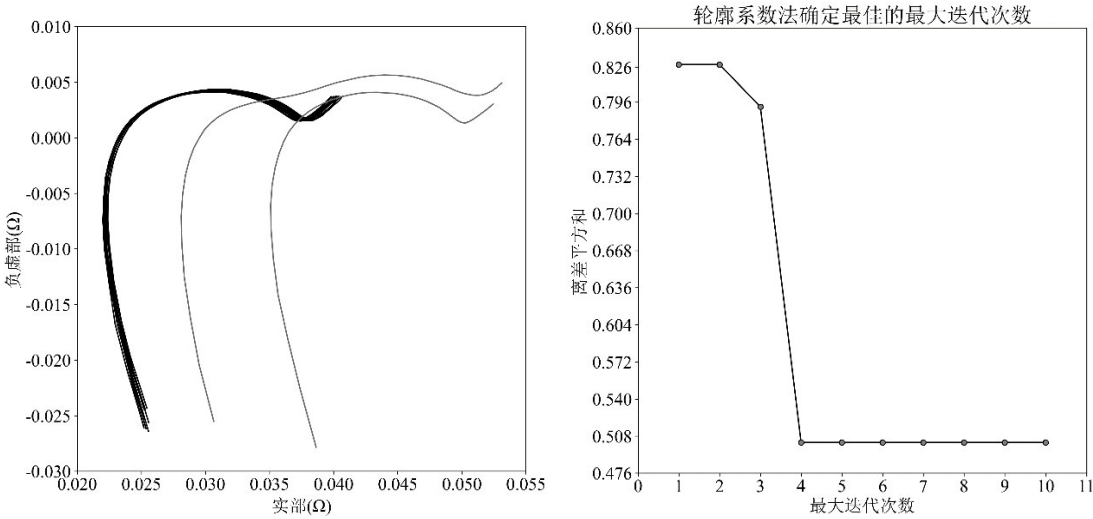


图15 老化+busbar异常识别结果

Fig.15 Aging+Busbar Anomaly Identification Results

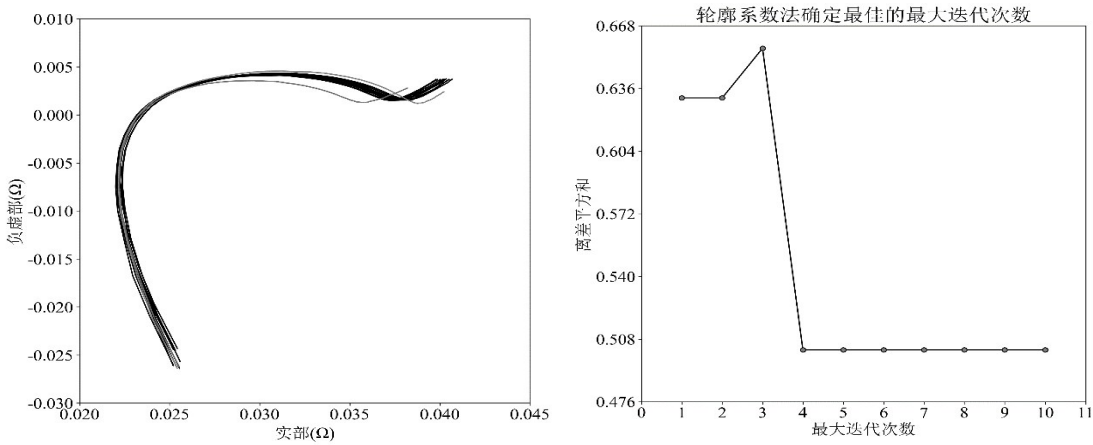


图16 高低SOC异常识别结果

Fig.16 Identification results of high and low SOC anomalies

21(右)所示可以正确识别。这种现象主要是由于DBSCAN算法的识别策略单一导致,当识别情况复杂时,需要更小的半径来满足需求,但是过小的半径将可能会小于正常数据间间隔,导致正常数据识别为异常。因此在等量数据实验条件下相比AP需要多次调整其粒子半径参数,且AP算法模型在精度、鲁棒性、参数敏感性方面(在数据存在重叠、密度不

均等方面)表现比DBSCAN更好,并且可以利用轮廓系数的后验结果来调整参数,取得最佳识别结果。

3.2 基于XGBoost分类模型的异常诊断结果

在XGBoost分类模型中,训练参数中最大树深度为32,学习率为0.4,树个数为200个,随机种子为42。利用KFold交叉方法进行训练预测,将交叉次

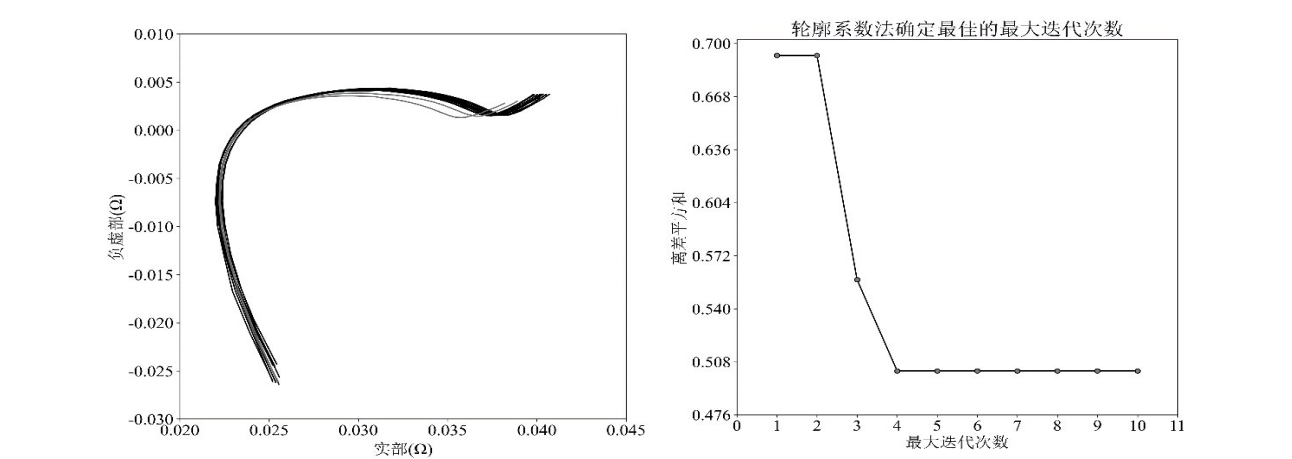


图 17 低 10%-20%SOC 异常识别结果

Fig.17 Low 10% -20% SOC anomaly identification results

表 4 其余异常识别的最佳迭代次数确认(两个异常与 10 个正常)

Tab.4 Confirmation of the optimal number of iterations for identifying other anomalies (2 Anomalies And 10 Normal)

识别种类	最大迭代次数	平均轮廓系数	聚类结果	聚类中心样本
正常+老化+busbar	1—2	0.828 159	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1]	[4, 11]
正常+低 SOC+高 SOC	3	0.656 463	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 2]	[5, 10, 11]
正常+高 SOC10%—20% 差异	1—2	0.693 052	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1]	[9, 11]

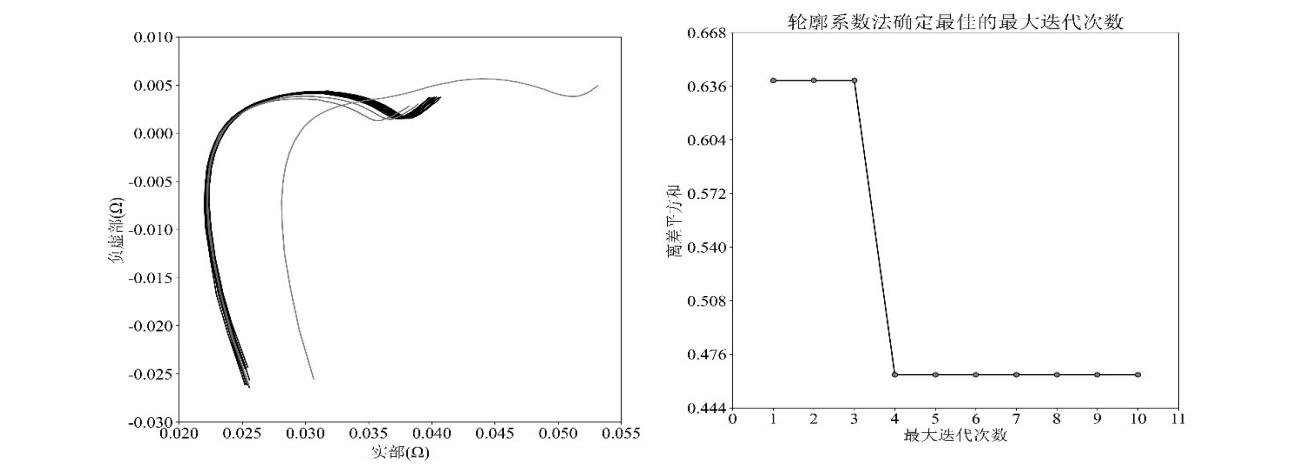


图 18 低 SOC+老化异常识别结果

Fig.18 Identification results of low SOC+aging abnormalities

数结果总和评估模型性能,分类结果显示 2 条异常数据分类错误,其模型精度达到 0.952,结果如图 22 所示。

4 电池异常识别和诊断系统实现

4.1 异常识别和诊断系统实现

图 23 所示为电池异常识别和诊断系统,其主要由 EIS 测试系统(采集设备)、上位机(数据库、特征提取方法、识别/诊断方法)组成。

EIS 测试系统:接受上位机发送的采集信号,对电池输出不同频率的电流,采集不同频率下电池反馈的电压信号,计算得到电池 EIS,以二进制数据流形式反馈给上位机。

上位机:通过对上位机部署多项功能建立电池异常识别和诊断流程,比如:对接云端数据库,部署数据处理方法、DRT 特征提取方法以及识别/诊断方法。然后根据电池异常识别和诊断流程运用多项功能实现该系统,并达到实际环境运用条件。

表 5 三个异常识别的最佳迭代次数确认

Tab.5 Confirmation of the optimal number of iterations for identifying three anomalies

最大迭代次数	平均轮廓系数	聚类结果	聚类中心样本
1	0.639 740	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 2]	[9,11—12]
2	0.639 740	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 2]	[9,11—12]
3	0.639 740	[0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 2]	[9,11—12]
4	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]
5	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]
6	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]
7	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]
8	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]
9	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]
10	0.464 714	[1, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 3, 4]	[3,8,10—12]

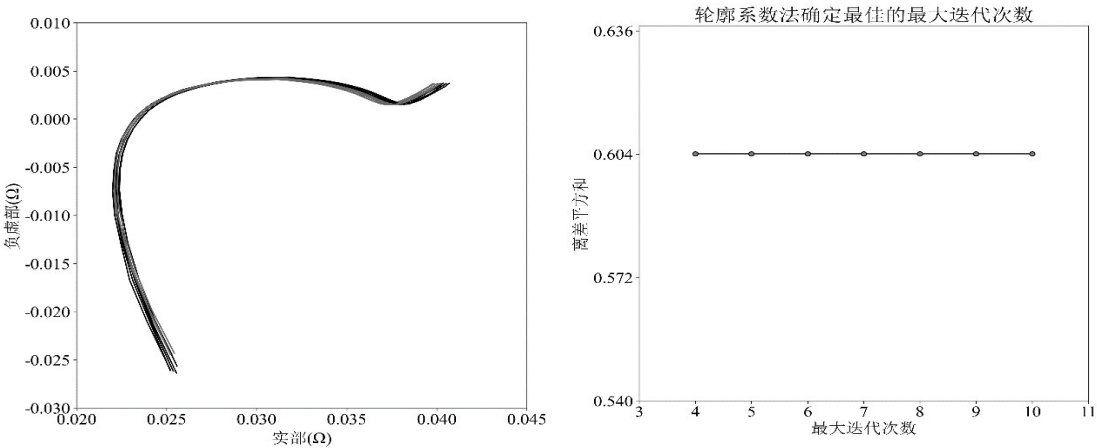


图 19 正常电池识别结果

Fig.19 Normal battery identification results

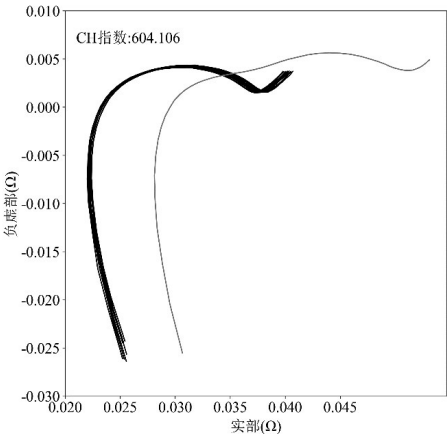


图 20 DBSCAN 单一异常识别结果

Fig.20 DBSCAN single anomaly identification results

4.2 电池异常识别和诊断流程

图 24 所示为电池异常识别和诊断流程,该流程主要由采样、模型数据分析、输出判定三部分组成。

采样部分主要为电池 EIS 数据的获取。利用 EIS 测量仪器连接电池正负极,通过给定不同频率电流获得电池反馈电压,在采集电压、电流后计算得

到电池 EIS 特征。

模型数据分析部分包含数据处理、特征提取、模型选择。数据处理主要针对缺失值根据情况进行剔除、取均值等操作,特征提取是包含阻抗谱模型得出的阻抗值(实部、虚部、频率)以及温度等特征的选取,特征提取和模型输入特征已在第二节说明,这里不再展开赘述。模型选择是通过设定电池测试类型和编号等信息分辨待测电池是否采集过此类电池,并存储有一定数据,以此选择识别模型(无监督聚类模型)还是诊断模型(有监督分类模型)。判定、输出部分是根据数据自身满足条件进行模型选择后,判定、输出根据对应模型输出不同结果。根据模型不同的输出结果,识别模型用于无待测电池类型,数据库无此电池存储数据,无法判定异常数据种类。仅根据聚类种类大于 2,判定电池数据存在异常,并对其异常数据进行人工标注,存储数据及该类型电池信息到数据库。诊断模型根据数据库存储的异常数据以及加载训练好的模型参数进行数据异常判断并指出存在异常的单体电池,并归类、存储数据。

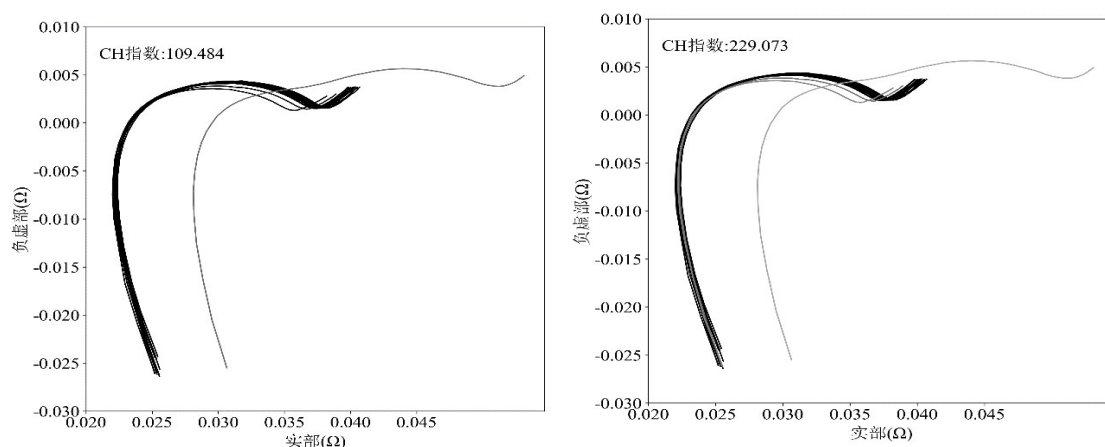


图21 DBSCAN多异常识别结果

Fig.21 DBSCAN multiple anomaly identification results

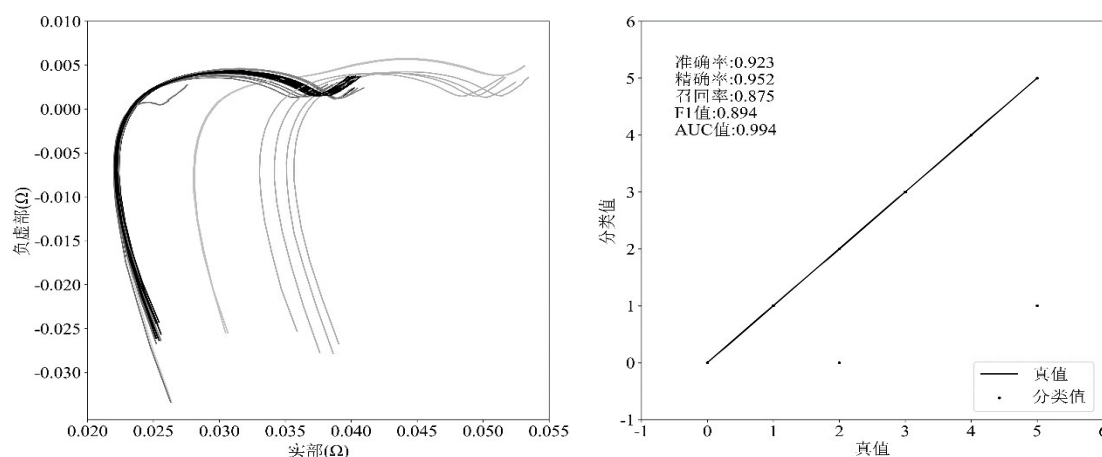


图22 XGBoost异常诊断结果

Fig.22 XGBoost abnormal diagnosis results

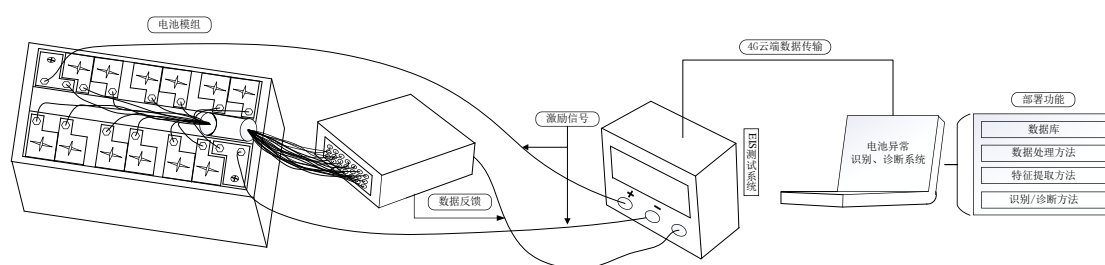


图23 电池异常识别和诊断系统

Fig.23 Battery anomaly identification and diagnosis system

5 结语

本文针对电池五种异常问题提出了典型异常的识别和诊断方法,并建立异常识别/诊断流程和系统。通过对EIS和DRT特征提取,并利用AP方法实现异常识别,利用XGBoost进行异常诊断,结果显

示所提出的电池异常识别和诊断方法可以比较准确地区分正常、SOH、温度、SOC、Busbar异常情况,异常检出率为100%,异常种类识别准确率超过92%,最终结合了数据采集、数据处理、特征提取、模型分析、数据判定、数据存储等方面提出了电池异常识别诊断的流程和系统。

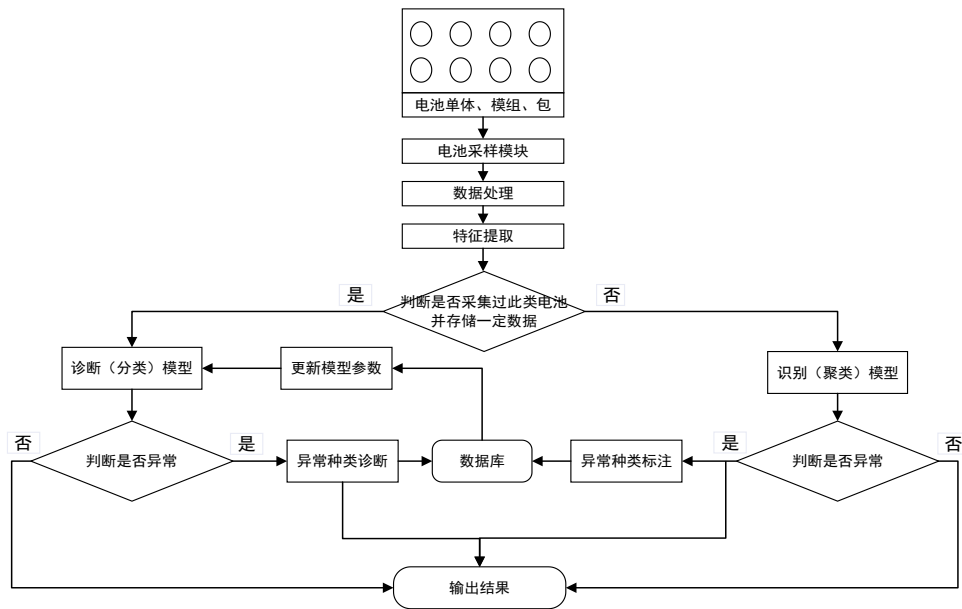


图 24 电池异常识别和诊断流程

Fig.24 Battery anomaly identification and diagnosis process

参考文献:

- [1] WANG X, FANG Q, DAI H, *et al.* Investigation on cell performance and inconsistency evolution of series and parallel lithium-ion battery modules [J]. *Energy Technology*, 2021, 9 (7): 1.
- [2] DAI H, JIANG B, HU X, *et al.* Advanced battery management strategies for a sustainable energy future: Multilayer design concepts and research trends [J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2021, 138(3): 110480.
- [3] WANG X, WEI X, ZHU J, *et al.* A review of modeling, acquisition, and application of lithium-ion battery impedance for onboard battery management [J]. *eTransportation*, 2021, 7 (2): 1.
- [4] JIANG B, ZHU J, WANG X, *et al.* A comparative study of different features extracted from electrochemical impedance spectroscopy in state of health estimation for lithium-ion batteries [J]. *Applied Energy*, 2022, 322: 119502.
- [5] JONES P K, STIMMING U, LEE A A. Impedance-based forecasting of lithium-ion battery performance amid uneven usage [J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 4806.
- [6] LAI X, HUANG Y F, DENG C, *et al.* Sorting, regrouping, and echelon utilization of the large-scale retired lithium batteries: A critical review [J]. *Renewable & Sustainable Energy Reviews*, 2021, 146: 111162.
- [7] ZHANG Y, TANG Q, ZHANG Y, *et al.* Identifying degradation patterns of lithium ion batteries from impedance spectroscopy using machine learning [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 1706.
- [8] CIUCCI F, CHEN C. Analysis of electrochemical impedance spectroscopy data using the distribution of relaxation times: a bayesian and hierarchical bayesian approach [J]. *Electrochimica Acta*, 2015, 167: 439.
- [9] WANG X, LI R, DAI H, *et al.* A novel dual time scale life prediction method for lithium-ion batteries considering effects of temperature and state of charge [J]. *International Journal of Energy Research*, 2021, 45(10): 14692.
- [10] FREY B J, DUECK D. Clustering by passing messages between data points [J]. *Science*, 2007, 315(5814): 972.
- [11] CHEN T, GUESTRIN C. XGBoost: a scalable tree boosting system [C]//KDD'16: Proceedings of the 22nd ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining. San Francisco: ACM, 2016.
- [12] ESTER M, KRIEGEL H P, SANDER J, *et al.* A density-based algorithm for discovering clusters in largespatial databases with noise [C]//KDD'96: Proceedings of the Second International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining. Portland Oregon: AAAI Press, 1996: 226.