

УДК 544.643.076.2+541.136/.136.88+004.032.26

DOI: 10.33184/bulletin-bsu-2021.3.22

МОДЕЛИРОВАНИЕ РАЗРЯДНЫХ КРИВЫХ ЛИТИЙ-СЕРНЫХ АККУМУЛЯТОРОВ С ПОМОЩЬЮ НЕЙРОННОЙ СЕТИ ПРЯМОГО РАСПРОСТРАНЕНИЯ

© Д. В. Колосницын*, Д. А. Осипова, Е. В. Кузьмина,
Е. В. Карасева, В. С. Колосницын

Уфимский Институт химии УФИЦ РАН
Россия, Республика Башкортостан, 450054 г. Уфа, пр. Октября, 69.

Тел.: +7 (962) 542 04 64.

*Email: DKolosnitsyn@gmail.com

Оценена возможность использования искусственных нейронных сетей (ИНС) прямого распространения для моделирования изменения характеристик литий-серных аккумуляторов (ЛСА) в процессе гальваностатического циклирования. Смоделированы разрядные кривые и кривая уменьшения емкости ЛСА при гальваностатическом циклировании. Показано, что в диапазоне обучающей выборки смоделированные кривые практически полностью совпадают с экспериментальными кривыми. Вне диапазона обучающей выборки наблюдается постепенный разбег между экспериментальными и расчетными кривыми. Таким образом, ИНС прямого распространения хорошо аппроксимируют и интерполируют экспериментальные разрядные кривые ЛСА, но плохо осуществляют их экстраполяцию.

Ключевые слова: моделирование, нейронные сети, литий-серный аккумулятор, литиевый аккумулятор, литий-ионный аккумулятор.

Введение

Одним из перспективных типов аккумуляторов, разрабатываемых сегодня, являются аккумуляторы на основе электрохимической системы литий-сера. Теоретическая удельная энергия электрохимической системы литий-сера составляет 2500 Вт·час/кг, что позволяет ожидать создания аккумуляторов с реальной удельной энергией 500–600 Вт·час/кг, что более чем в 2 раза превышает достигнутую удельную энергию лучших образцов литий-ионных аккумуляторов (ЛИА) [1].

При разработке новых типов аккумуляторов важной задачей является предсказание срока их службы и прогнозирование изменений характеристик аккумуляторов в процессе эксплуатации. Прогнозирование характеристик аккумуляторов осуществляют с помощью различных моделей, которые условно можно разбить на две группы – структурные (электрохимические) и функциональные. Структурные модели описывают поведение аккумуляторов исходя из закономерностей физико-химических процессов, протекающих в них при заряде и разряде, а функциональные модели – поведение аккумуляторов без какого-либо анализа проходящих в них процессов, лишь на основе эмпирических зависимостей между режимами и условиями заряда и разряда и энергией и емкостью.

Основными характеристиками аккумуляторов являются зарядная и разрядная емкость и энергия. Эти параметры можно рассчитать из зарядно-разрядных зависимостей аккумулятора и веса его компонентов. Поэтому одной из задач моделирования аккумуляторов является построение их зарядных и разрядных зависимостей.

В отличие от разрядных кривых ЛИА, которые имеют, как правило, одну разрядную площадку,

разрядные кривые литий-серных аккумуляторов (ЛСА) имеют более сложную форму с двумя площадками и перегибом между ними (рис. 1). В процессе циклирования ЛСА может изменяться как длина площадок на разрядных кривых, так и соотношение их длин. Сложная форма зарядно-разрядных кривых ЛСА и ее изменение в процессе циклирования осложняет их моделирование.

В последние годы, в связи с развитием нейросетевых технологий и увеличением мощности компьютеров, активно развивается применение моделей на основе искусственных нейронных сетей (ИНС), которые, по своей сути, являются функциональными моделями. Способность нейронных сетей к обучению позволяет ИНС устанавливать сложные зависимости между входными и выходными параметрами. При наличии достаточного объема экспериментальных данных нейронные сети могут аппроксимировать многопараметровые зависимости. Существуют множество разновидностей нейронных сетей, предназначенных для решения конкретных задач. Зачастую адекватность разработанных моделей моделируемым объектам определяется видом используемой нейронной сети [2–3].

Ранее нами было показана возможность моделирования изменения формы зарядно-разрядных зависимостей ЛСА в процессе циклирования с использованием адаптивной сети на основе системы нечеткого вывода (Adaptive Neuro-Fuzzy Inference System, ANFIS) [4–6]. Смоделированные с помощью ANFIS разрядные кривые и кривая спада емкости ЛСА имели хорошее совпадение с экспериментальными кривыми. Разница между смоделированной и экспериментальными кривыми составляла порядка 5%.

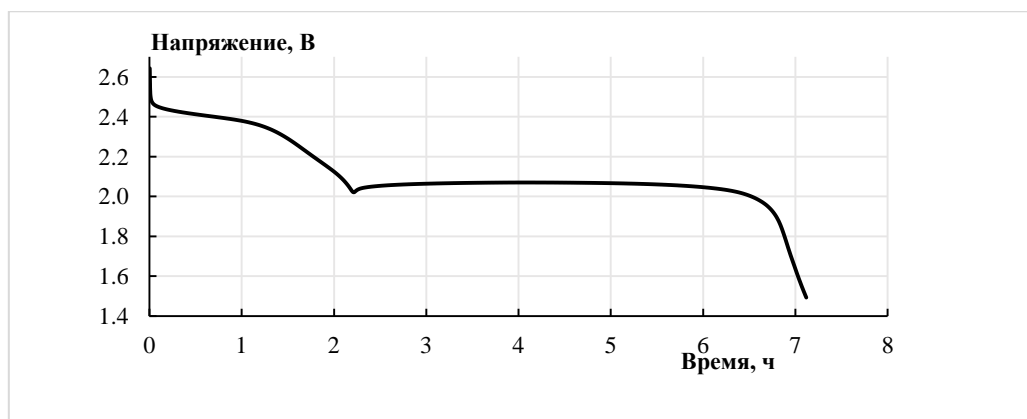


Рис. 1. Типичная разрядная кривая ЛСА.

Целью данной работы была оценка возможности применения ИНС прямого распространения для моделирования изменения характеристик ЛСА в процессе циклирования.

Экспериментальная часть

Объекты исследования

В качестве объектов исследования использовали литий-серные ячейки (ЛСЯ) с электродным модулем стековой конструкции в корпусе из металлополимерного ламината, изготовленные в лаборатории электрохимии УФИХ УФИЦ РАН. Характеристики ячеек приведены в табл.

Таблица

Спецификация литий-серных ячеек

Тип	Призматическая в корпусе из металлополимерного ламината (pouch cell)
Размеры электродного модуля, мм	62 x 80 x 2.5
Номинальное напряжение, В	2.3
Поверхностная емкость положительного электрода (серный электрод), мА·ч/см ²	2.5
Количество электродных пар	8

Гальваностатическое циклирование ЛСЯ осуществлялось с помощью батарейного тестера BT-05PG [7]. Циклирование ЛСЯ производили в диапазоне потенциалов от 1.8 В до 2.5 В. Для обработки экспериментальных данных и подготовки данных для обучения нейронной сети использовали ПО «EChemLab, Data Analyzer» [8–9].

Данные, используемые для моделирования, были получены при циклировании литий-серной ячейки в гальваностатическом режиме при $t = 30\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Модель

Напряжение на ЛСЯ при циклировании в конкретный момент времени зависит от SoH (SoH – State of Health, работоспособность ячейки) ячейки и от прошедшего количества электричества. Количество прошедшего электричества с начала разрядного полуцикла пропорционально времени с начала полуцикла, а SoH для упрощения будем считать прямо пропорционален количеству прошедших циклов. Тогда:

$$U = f(n, t) \quad (1)$$

где:

U – напряжение на ячейке, В;

n – номер текущего цикла;

t – время с начала текущего цикла, с.

Для моделирования была создана сеть прямого распространения с одним скрытым слоем, имеющим 400 нейронов (рис. 2). Для обучения использовали экспериментальные данные (разрядные кривые) с 20-го по 49-й цикл и с 51-го по 99-й цикл.

Для симулирования кривой изменения емкости ЛСЯ в процессе циклирования использовали модель, описанную выше. На каждом цикле симулировалась разрядная кривая в диапазоне от 2.7 В до 1.5 В. Шаг по времени был принят равным 50 мс. Разрядную емкость на цикле рассчитывали по формуле:

$$Q_n = i \cdot t_n, \quad (2)$$

где:

Q_n – емкость на n -ом цикле, мА·ч;

i – разрядный ток, мА;

t_n – длительность полуцикла разряда, ч.

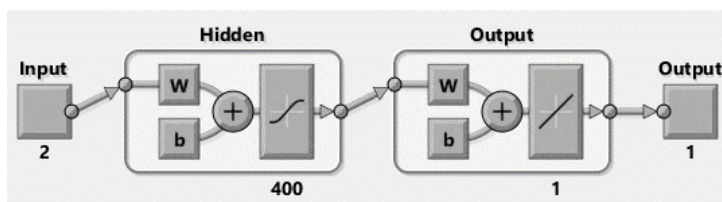


Рис. 2. Архитектура используемой искусственной нейронной сети прямого распространения.

Результаты и обсуждения

Для оценки возможности моделирования разрядной кривой были смоделированы разрядные кривые на 50-м, 100-м, 120-м и 140-м циклах (рис. 3). Как видно из рис. 3а и 3б, моделируемые кривые на 50-м и 100-м цикле практически полностью повторяют экспериментальные кривые. Хорошее совпадение на данных циклах можно объяснить тем, что они находятся в диапазоне обучающей выборки. На смоделированных кривых 120-го и 140-го цикла видно, что моделируемые кривые достаточно сильно отличаются от экспериментальных кривых. Это связано с тем, что нейронные сети прямого распространения в силу своей структуры могут хорошо описывать

данные, лежащие в диапазоне обучающей выборки, однако плохо описывают данные, лежащие вне ее.

Симулированная кривая уменьшения емкости также хорошо совпадает с экспериментальной кривой (рис. 4) в диапазоне обучающей выборки. Вне диапазона обучающей выборки наблюдается постепенное расхождение между экспериментальной и смоделированной кривыми. На 140-м цикле разница между симулированной и экспериментально измеренной емкостью составляет 23%.

Полученные кривые описывают экспериментальные данные в диапазоне обучающей выборки лучше, чем симулированные с помощью ANFIS-модели [6]. Вне диапазона обучающей выборки меньшее расхождение наблюдается у ANFIS-моделей.

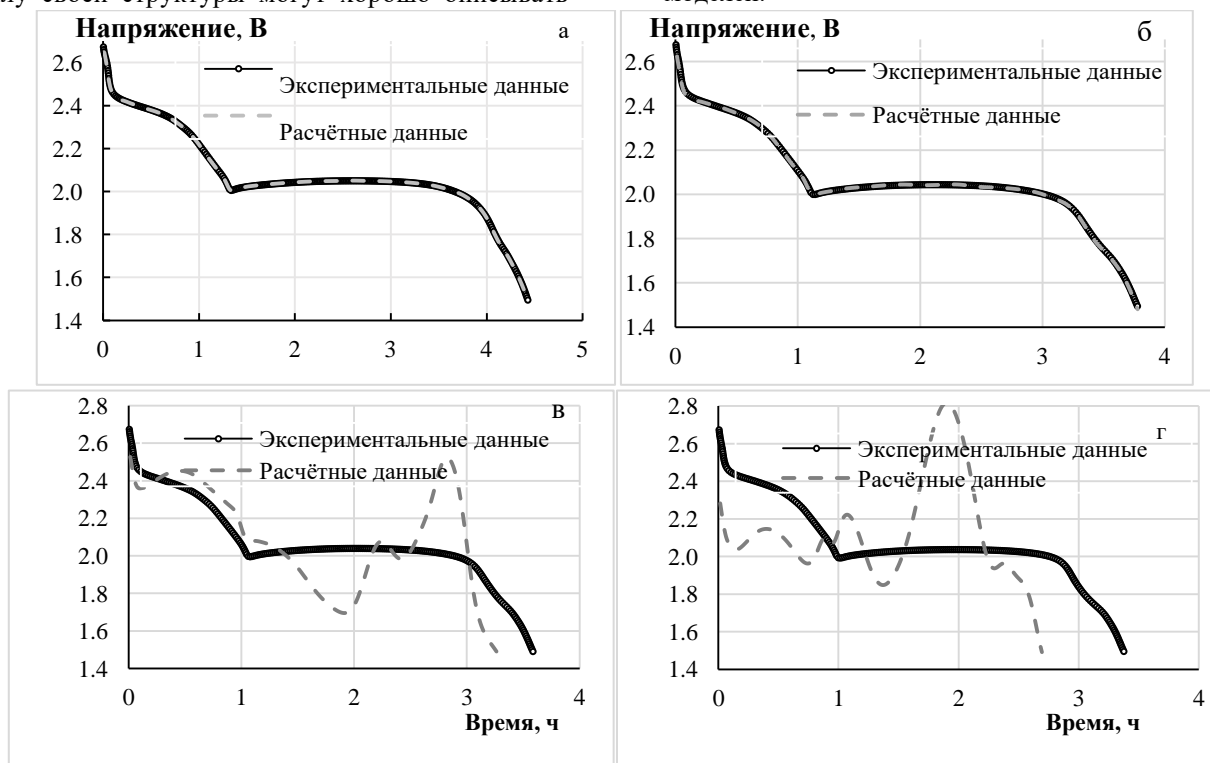


Рис. 3. Экспериментальные и симулированные разрядные кривые литий-серных ячеек: а – 50 цикл; б – 100 цикл; в – 120 цикл; г – 140 цикл.

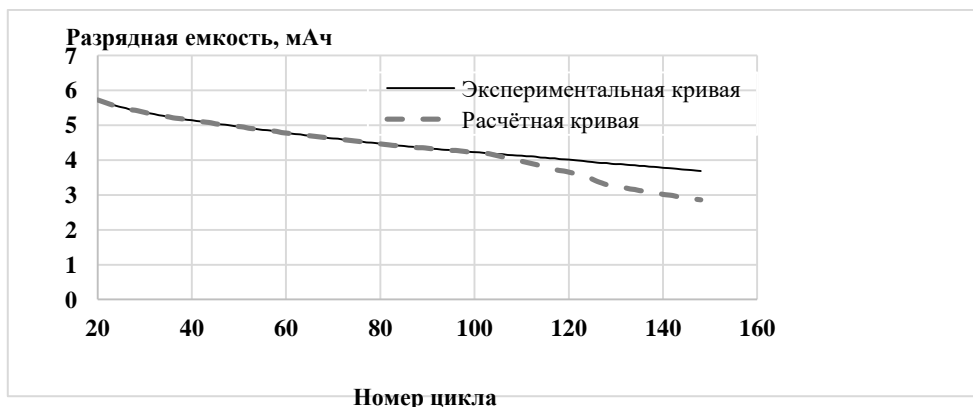


Рис. 4. Изменение практической и смоделированной разрядной емкости в процессе циклирования литий-серной ячейки.

Время обучения у сетей прямого распространения гораздо меньше, чему у ANFIS. Так, например, сеть прямого распространения, содержащая 400 нейронов на скрытом слое, обучалась порядка 25 мин, ANFIS-модель на этом же компьютере обучалась несколько десятков часов.

Заключение

Проведено моделирование изменения разрядно-зарядных кривых литий-серных аккумуляторов в процессе циклирования с помощью ИНС прямого распространения. Показано, что смоделированные разрядные кривые имеют хорошее совпадение с разрядными кривыми, полученными экспериментально в диапазоне обучающей выборки. Однако при экстраполяции разрядных кривых смоделированные кривые достаточно сильно отличаются от экспериментальных кривых.

В отличие от ИНС прямого распространения ANFIS-модели хуже описывают поведение аккумуляторов в диапазоне обучающей выборки, но их преимуществом является то, что при правильном выборе входных параметров и функций принадлежности могут прогнозировать поведение аккумуляторов вне диапазона обучающей выборки.

Несмотря на то, что модели прямого распространения не обладают сильными прогностическими свойствами вне диапазона обучающих данных, они могут быть востребованы в системах управления и контроля аккумуляторными батареями, которые, вероятнее всего, будут включать в себя цифровые агрегированные двойники (Цифровой агрегированный двойник (Digital Twin Aggregate, DTA) – система, которая объединяет все цифровые двойники и их реальные прототипы, позволяя собирать данные и обмениваться ими в реальном времени) [10–11]. Следует также отметить, что данные, получаемые при эксплуатации реальных аккумуляторов, могут быть использованы для дообучения нейронной сети, что приведет к улучшению качества модели.

Работа выполнена в рамках Государственного задания по теме №АААА-А20-120012090022-1.

Работа выполнена на оборудовании ЦКП «Химия».

ЛИТЕРАТУРА

1. Bruce P. G., Freunberger S. A., Hardwick L., Tarascom J. M. Li-O₂ and Li-S batteries with high-energy storage // *Nature Mater.* 2012. Vol. 11. P. 19–29. DOI: 10.1038/nmat3191.
2. Long B., Li X., Gao X., Liu Z. Prognostics Comparison of Lithium-Ion Battery Based on the Shallow and Deep Neural Networks Model // *Energies.* 2019. Vol. 12. DOI: 10.3390/en12173271.
3. Haykin S. *Neural Networks: A Comprehensive Foundation* Subsequent Edition. Prentice Hall, 1999. 842 p.
4. Chau K. T., Wu K. C., Chan C. C., Shen W. X. A new battery capacity indicator for nickel–metal hydride battery powered electric vehicles using adaptive neuro-fuzzy inference system // *Energy Conversion and Management.* 2003. Vol. 44. P. 2059–2071. DOI: 10.1016/S0196-8904(02)00249-2.
5. Chau K. T., Wu K. C., Chan C. C. A new battery capacity indicator for lithium-ion battery powered electric vehicles using adaptive neuro-fuzzy inference system // *Energy Conversion and Management.* 2004. Vol. 45. P. 1681–1692. DOI: 10.1016/j.enconman.2003.09.031.
6. Колосницын Д. В., Карасева Е. В., Кузьмина Е. В., Колосницын В. С. О возможности моделирования разрядных характеристик литий-серных аккумуляторов с использованием нечетких нейронных сетей // *Электрохимия.* 2021. Т. 57. №3. С. 190–194. DOI:10.31857/S042485702103004X.
7. Мочалов С. Э., Антипин А. В., Нурғалиев А. Р., Колосницын В. С. Многоканальный потенциостат-гальваностат для циклических испытаний аккумуляторов и электрохимических ячеек // *Электрохимическая энергетика.* 2015. Т. 15. №1. С. 45–50. [Mochalov S. E., Antipin A. V., Nurgaliev A. R., Kolosnitsyn V. S. Multichannel potentiostat-galvanostat for cycling of batteries and electrochemical cells // *Elektrokhimicheskaya energetika (in Russian).* 2015. Vol. 15. No. 1. P. 45–50.
8. Свид. 2019611773 Российская Федерация. Свидетельство об официальной регистрации программы для ЭВМ. "EiChemLab, Data Analyzer" / Д. В. Колосницын; правообладатель УФИЦ РАН (RU). – опубли. 04.02.2019, Реестр программ для ЭВМ. 1 с.
9. Колосницын Д. В., Кузьмина Е. В., Карасева Е. В. Автоматизация обработки данных электрохимических исследований аккумуляторных ячеек // *Электрохимическая энергетика.* 2019. Т. 19. №4. С. 186–197. [Kolosnitsyn D. V., Kuzmina E. V., Karaseva E. V. Automation of Data Processing of Electrochemical Studies of Battery Cells // *Elektrokhimicheskaya energetika (in Russian).* 2019. V. 19. No 4. P. 186–197. DOI: 10.18500/1608-4039-2019-19-4-186-197.
10. Sancarlos A., Cameron M., Abel A., Cueto E., Duval J.-L., Chinesta F. From ROM of Electrochemistry to AI-Based Battery Digital and Hybrid Twin//Archives of Computational Methods in Engineering. 2019. DOI: 10.1007/s11831-020-09404-6.
11. Ramachandran R., Subathra B., Srinivasan S. Recursive Estimation of Battery Pack Parameters in Electric Vehicles. 9th IEEE International Conference on Computational Intelligence and Computing Research (ICIC). Madurai. INDIA. 2018. P. 165–171.

Поступила в редакцию 20.05.2021 г.

DOI: 10.33184/bulletin-bsu-2021.3.22

SIMULATION OF DISCHARGE VOLTAGE PROFILES OF LITHIUM-SULFUR BATTERIES USING FEED FORWARD NEURAL NETWORKS

© D. V. Kolosnitsyn*, D. A. Osipova, E. V. Kuzmina,
E. V. Karaseva, V. S. Kolosnitsyn

*Ufa Institute of Chemistry, Russian Academy of Sciences
69 Oktyabrya Avenue, 450054 Ufa, Republic of Bashkortostan, Russia.*

Phone: +7 (962) 542 04 64.

**Email: dkolosnitsyn@gmail.com*

The authors estimated the possibility of simulation of changes in the characteristics of lithium-sulfur batteries (LSB) during galvanostatic cycling using artificial neural networks (ANNs). The discharge voltage profiles and the curve of decrease of discharge capacity of LSB during galvanostatic cycling were simulated. The results of modeling characteristics of the LSB obtained using the adaptive neuro-fuzzy inference system ANFIS were compared with the results obtained using the ANN of direct propagation. It was shown that in the range of the training data the simulation results are in good agreement with the experimental discharge voltage profiles. Outside the range of the training data, a gradual runaway between the experimental and simulated profiles is observed. When extrapolating the discharge voltage profiles simulated with the use of feed-forward ANN, the results differ from the experimental curves. The learning rate of the feed-forward ANN is higher than the ANFIS learning rate. Thus, ANNs of direct propagation approximate and interpolate the experimental discharge curves of the LSB well, but poorly perform their extrapolation. Although feedforward models do not have strong predictive properties outside the range of training data, they can be useful in battery management and monitoring systems, which are likely to include digital aggregated twins.

Keywords: modeling, artificial neural networks, lithium-sulfur battery, lithium battery, lithium-ion battery.

Published in Russian. Do not hesitate to contact us at bulletin_bsu@mail.ru if you need translation of the article.

REFERENCES

1. Bruce P. G., Freunberger S. A., Hardwick L., Tarascom J. M. *Nature Mater.* 2012. Vol. 11. Pp. 19–29. DOI: 10.1038/nmat3191.
2. Long B., Li X., Gao X., Liu Z. *Energies.* 2019. Vol. 12. DOI: 10.3390/en12173271.
3. Haykin S. *Neural Networks: A Comprehensive Foundation* Subsequent Edition. Prentice Hall, 1999.
4. Chau K. T., Wu K. C., Chan C. C., Shen W. X. *Energy Conversion and Management.* 2003. Vol. 44. Pp. 2059–2071. DOI: 10.1016/S0196-8904(02)00249-2.
5. Chau K. T., Wu K. C., Chan C. C. *Energy Conversion and Management.* 2004. Vol. 45. Pp. 1681–1692. DOI: 10.1016/j.enconman.2003.09.031.
6. Kolosnitsyn D. V., Karaseva E. V., Kuz'mina E. V., Kolosnitsyn V. S. *Elektrokhimiya.* 2021. Vol. 57. No. 3. Pp. 190–194. DOI:10.31857/S042485702103004X.
7. Mochalov S. E., Antipin A. V., Nurgaliev A. R., Kolosnitsyn V. S. *Elektrokhimicheskaya energetika.* 2015. Vol. 15. No. 1. Pp. 45–50.
8. Svid. 2019611773 Rossiiskaya Federatsiya. Svidetel'stvo ob ofitsial'noi registratsii programmy dlya EVM. "ElChemLab, Data Analyzer" / D. V. Kolosnitsyn; pravoobladatel' UFITs RAN (RU). – opubl. 04.02.2019, Reestr programm dlya EVM.
9. Kolosnitsyn D. V., Kuz'mina E. V., Karaseva E. V. *Elektrokhimicheskaya energetika.* 2019. Vol. 19. No. 4. Pp. 186–197. DOI: 10.18500/1608-4039-2019-19-4-186-197.
10. Sancarlos A., Cameron M., Abel A., Cueto E., Duval J.-L., Chinesta F. *Archives of Computational Methods in Engineering.* 2019. DOI: 10.1007/s11831-020-09404-6.
11. Ramachandran R., Subathra B., Srinivasan S. Recursive Estimation of Battery Pack Parameters in Electric Vehicles. 9th IEEE International Conference on Computational Intelligence and Computing Research (ICIC). Madurai. INDIA. 2018. Pp. 165–171.

Received 20.05.2021.