



爱思唯尔

内容列表可在ScienceDirect上找到

Journal of Power Sources

期刊主页:www.elsevier.com/locate/jpowsour

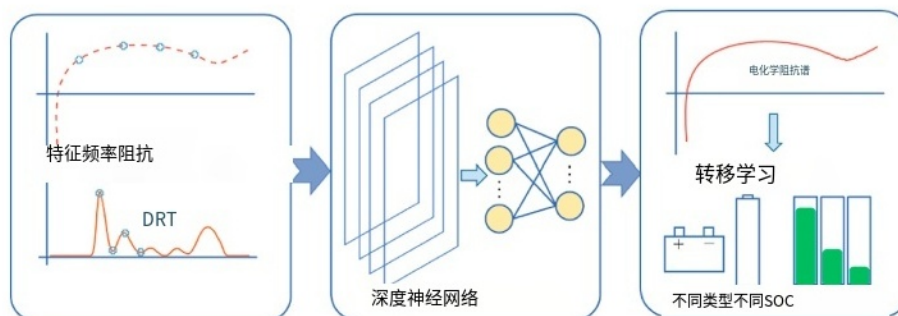
基于深度神经网络的电池阻抗谱预测，仅使用特征频率阻抗

悦太阳, 鲁伊Xiong^{*}, Chenxu王, 金鹏田^一, 海龙李^b^a北京理工大学机械工程学院先进储能与应用联合实验室, 北京市海淀区中关村南大街5号, 100081^b梅耶尔达伦大学商业、社会与工程学院, 瑞典韦伊斯特拉斯72123

Highlights

- 全频率阻抗谱只能用四个频率的阻抗来预测。
- Simple测量和基于模型的预测相结合。
- 开发的阻抗预测方法可以快速适应各种电池。

Graphical abstract



这是我最喜欢的一件事

关键词:

锂离子电池电化学阻抗谱特征频率深度学习
转移学习

摘要。

电化学阻抗谱可用于表征和监测电池的状态。然而，机载采集的难度限制了其广泛应用。这项工作提出了一种利用卷积神经网络获得阻抗谱的新方法，该方法使用在几个特征频率下测量的阻抗作为输入。根据弛豫时间分布得出的接触极化和固体电解质间相生长过程的特征峰谷对应的时间常数来确定特征频率。基于包含8个电池全寿命周期阻抗谱的数据集对所提方法进行了验证。预测结果与实际情况吻合，最大均方根误差为0.93 mΩ。所开发的方法还可以快速适应于获取具有不同化学性质的其他电池的阻抗谱，并用于基于迁移学习方法的各种电池状态的预测。

1. 介绍

锂离子电池因其循环寿命长、能量密度高、自放电率低等优异性能，在交通运

输、能源、移动终端等领域作为储能器件得到了广泛的应用。监控锂电池的状态、老化和安全性是确保其可靠应用的关键[1]。电化学阻抗谱法(EIS)是一种常用的无损检测方法

^{*} Corresponding author. E-mail address: rxiong@bit.edu.cn (R. Xiong).

<https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233414>

Received 30 May 2023; Received in revised form 3 July 2023; Accepted 14 July 2023 Available online 20 July 2023

0378-7753/© 2023 Elsevier B.V. All rights reserved.

用于表征电池, 揭示了锂电池内部的动态电极动力学过程[2]。基于不同电化学过程表现出的时间常数, 可以将阻抗谱的变化与电池内部机制(如固体电解质间相(SEI)生长、电荷转移和锂离子扩散)联系起来, 表征电池的性能。辅助研究工具包括等效电路模型(ecm)、松弛时间分布(DRT)、阻抗机制模型等。多时间尺度特征可以被区分和量化, 以更好地获取电池状态[3]。EIS已广泛应用于电池管理的各个方面, 包括荷电状态(SOC)估计[4]、健康状态(SOH)估计[5]、温度估计[6]、镀锂检测[7]和故障诊断[8]。此外, EIS可以提供比目前电池管理系统(BMS)收集的信号更丰富的信息。Penelope等[9]使用充电前EIS和未来循环协议来预测下一个周期和更长时间内的电池容量。结果表明, 在不了解使用历史的情况下, 误差为8.2%。Zhou等人[10]借助机器学习方法, 在细胞筛选和老化监测两种场景下, 从阻抗中可靠地量化了关键的理化参数。结果表明, 在电池筛选中, 可以准确估计电池电极的弯曲度、孔隙度和活性物质含量, 误差小于2%; 在老化监测中, 可以准确估计SEI电阻和电荷转移电阻, 误差小于5%。以上应用表明, EIS提供了对电池更全面的认识[11]。

然而, 它需要特定的器件, 并且需要很长时间才能获得宽带阻抗谱, 这限制了它的应用[12]。对于在电动汽车上的应用, 车载阻抗谱的获取备受关注。一种方法是基于测量方法。在产生干扰后测量电压和电流信号。然后利用傅立叶变换和小波变换等方法对实测信号进行阻抗计算。Ramilli等[13]考虑了多重正弦二进制激励, 缩短了测量时间, 简化了电池阻抗谱的硬件。Qahouq等人[14]利用具有闭环控制的功率变换器在给定频率下产生电压阶跃函数扰动, 以产生电压和电流响应。通过对响应进行傅立叶分析, 可以得到等于或高于扰动频率范围内的阻抗谱。Du等人[15]选择一个周期方波作为激励电流, 利用Morlet小波将激励电流和响应电压变换到频域, 得到阻抗谱。另一种获得阻抗谱的方法是利用模型。经常建立ecm和分数阶模型来表征频域的阻抗[16]。随着人工智能的发展, 一些研究建立了深度学习模型来预测阻抗谱。Duan等[17]利用恒流充电下采集的数据作为输入, 利用深度学习的方法预测了电池在充满电和完全放电状态下的阻抗谱。也可以从不完全充电数据中得到可靠的预测。Guo等人[18]利用部分电压范围内测量的数据进一步预测了阻抗谱。选择合适的部分电压范围可以达到更高的精度。

虽然可以实现电池阻抗谱的板载采集, 但仍有一些问题需要解决。对于测量方法来说, 总是需要专门设计的扰动装置, 这就增加了成本。而且由于电池阻抗谱的频率范围很宽(mHz ~ kHz), 极高采样频率的限制使得被测阻抗谱无法覆盖整个频率范围。为了快速测定阻抗, 通常采用含有多频次谐波的信号。与单频信号相比, 多频信号难以保证响应的信噪

比, 增加了测量的不确定性[19]。对于估计方法, 需要不断调整模型以适应随电池状态和工作条件变化的阻抗谱, 这增加了模型的复杂性。多个合理的模型可能具有相同的精度, 但在解释阻抗谱时, 得出的结论可能完全不同。阻抗谱的宽频率范围需要高采样率来捕获不同的时间尺度, 增加了对BMS的要求。需要注意的是, 现有的测量或估计模型无法快速稳定地获得全频阻抗谱。电池阻抗谱的板载采集仍然是一个挑战。

本研究旨在通过借助卷积神经网络(CNN)预测阻抗谱来解决上述问题。该算法的输入是在中高频范围内的几个特征频率下测量的阻抗。通过单频扰动可以简单地获得特征频率处的阻抗。所提出的方法可以稳定地获取阻抗谱, 并通过简单的测量和基于模型的预测相结合, 快速适应其他电池状态和化学性质。

文章的其余部分组织如下。第2节介绍阻抗谱的预测方法。第3节展示了开发的数据集和所涉及的电池测试。第4节介绍了所提出方法的验证。结论在第5节中得出。

2. 方法

图1给出了全频阻抗谱预测的概述。特征频率由DRT曲线上的接触极化和SEI生长过程确定。此外, 所提出的方法可以快速转换到不同的电池状态和类型。

2.1. 特征频率的确定

DRT可以实现频域EIS的解释, 区分不同时间常数的电化学过程[20]。与ecm的预建模不同, DRT方法的思想是将阻抗响应表示为无限数量的微分RC分量。忽略电感的影响, 阻抗 $Z(\omega)$ 可以表示为:

$$Z(\omega) = R_0 + R_p \int_0^{\infty} \frac{g(\tau)}{1 + j\omega\tau} d\tau \quad (1)$$

式中, $g(\tau)$ 为极化电阻分布函数, τ 为RC并联电路的时间常数; 和 R_0 和 R_p 分别表示欧姆阻抗和极化阻抗。边界条件为:

$$\int_0^{\infty} \frac{g(\tau)}{1 + j\omega\tau} d\tau = 1 \quad (2)$$

如图2所示, 可以通过DRTtools基于Tikhonov正则化计算EIS的DRT结果[21]。可以注意到, 在不同的时间常数下, 可以清晰地识别出P1~P4四个动力学过程。过程P1表示由于集流器腐蚀而产生的接触极化。进程P2表示SEI的增长。同时, P1和P2独立于电池SOC。过程P3和P4表示电荷转移和扩散, 这两个过程都与锂离子浓度有关, 即SOC[22]。不同SOC下的DRT曲线见补充说明1。在实际应用中, 电池工作条件和状态的变化使得阻抗谱的实时测量变得困难[23]。阻抗谱随着电池内部状态的变化明显。为了保证测量的有效性而不影响正常

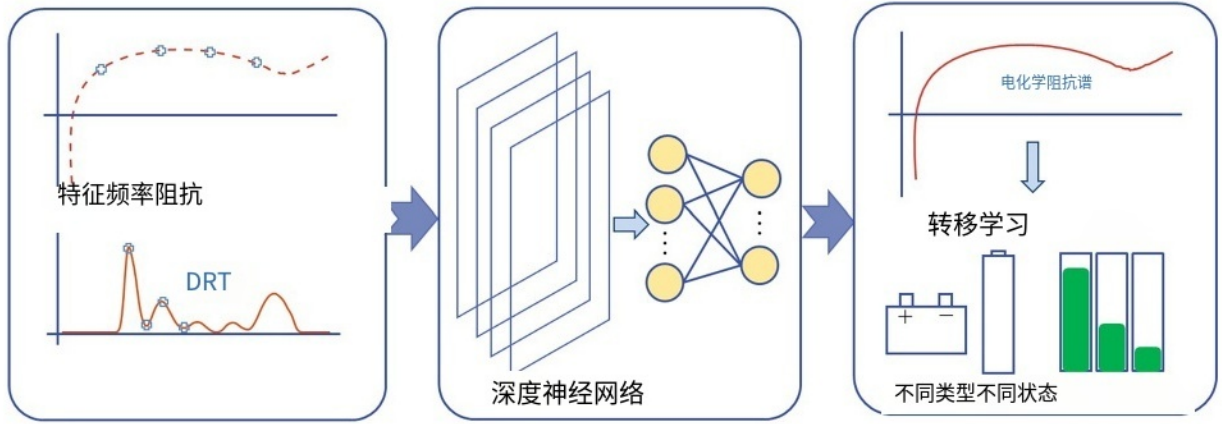
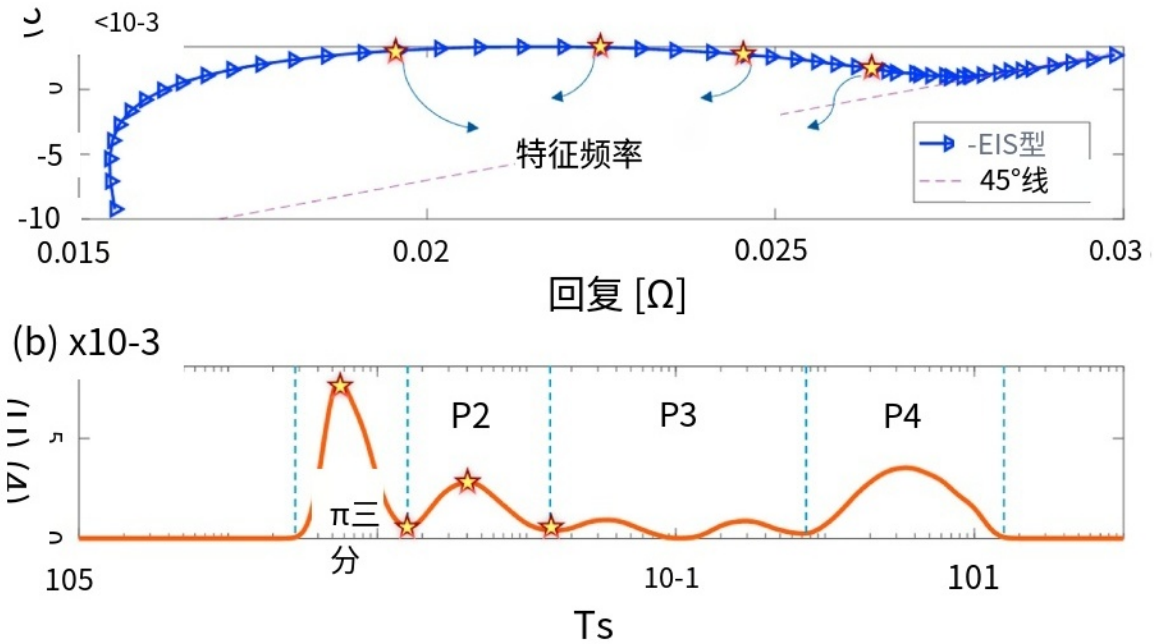


图1所示。所提出方法概述。

图2所示。电池寿命开始时充满电状态下的特征频率测定。(a)阻抗谱的Nyquist图。(b)EIS的DRT结果。五边形表示识别出的特征频率。P₁~P₄分别表示了接触极化、SEI生长、电荷转移和扩散过程。

电池在充电/放电过程中的运行状态，需要在极短的时间内完成车载测量[24]。因此，机载阻抗谱测量主要针对中(100 Hz~1 Hz)和高(1 kHz~100 Hz)频率区域，以获得可靠的数据[25]。特征频率也从中高频区域确定，对应于DRT曲线中P1(接触极化)和P2(SEI生长)的峰谷。在得到时间常数 τ 后，对应的频率 f 可通过以下公式计算得到：

$$f = \frac{1}{2\pi\tau} \quad (3)$$

一般来说，由于过程P1和过程P2不依赖于SOC，可以从任何SOC上确定特征频率，这也为不同SOC下的迁移学习提供了依据。当电池类型或温度发生变化时，需要重新确定特征频率。在电池老化过程中，特征频率对应的时间常数与补充注1相比没有明显变化。但是，特征频率处的峰、

谷和峰面积是不同的，这使得基于特征频率的电池老化预测方法是可行的。在本研究中，对于同类型电池，从电池寿命开始时充满电状态的阻抗谱确定特征频率。训练和测试数据集包含来自不同老化水平的阻抗谱。

2.2. 发展CNN

2.2.1. CNN架构

CNN是一种具有卷积结构的深度神经网络，它由交替的卷积层和最大池化层组成，以实现特征提取。最后，将全连接(密集)层连接起来，将预测结果转化为一维向量进行输出。CNN利用梯度下降最小化损失函数，并逐层调整网络中的权值。已有研究将CNN作为向量来预测电池状态，取得了很好的效果[17]。在本研究中，采用CNN建立阻抗在特性之间的映射关系

频率与全频区阻抗之间的映射。数学上，它可以用下面的函数来表示：

$$[\mathbf{Z}', \mathbf{Z}'] = f_{\text{CNN}}(\mathbf{Z}_c', \mathbf{Z}_c'') \quad (4)$$

式中， f_{CNN} 为CNN描述的关系； \mathbf{Z}' 和 \mathbf{Z}'' 分别表示全频率区域的实部和虚部序列； \mathbf{Z}_c' 和 \mathbf{Z}_c'' 分别表示特征频率处的实部和虚部序列。具体表达式如下：

$$\begin{cases} \mathbf{Z}' = [\mathbf{Z}'(f_1), \mathbf{Z}'(f_2), \dots, \mathbf{Z}'(f_N)] \\ \mathbf{Z}'' = [\mathbf{Z}''(f_1), \mathbf{Z}''(f_2), \dots, \mathbf{Z}''(f_N)] \\ \mathbf{Z}_c' = [\mathbf{Z}'(f_{c1}), \mathbf{Z}'(f_{c2}), \mathbf{Z}'(f_{c3}), \mathbf{Z}'(f_{c4})] \\ \mathbf{Z}_c'' = [\mathbf{Z}''(f_{c1}), \mathbf{Z}''(f_{c2}), \mathbf{Z}''(f_{c3}), \mathbf{Z}''(f_{c4})] \end{cases} \quad (5)$$

式中 \mathbf{Z}' 和 \mathbf{Z}'' 分别表示阻抗 \mathbf{Z} 的实部和虚部； f_i 为阻抗谱的第 i 个频率， N 为阻抗谱中频率的总数；而 $f_{c1} \sim f_{c4}$ 表示前面确定的4个特征频率。

开发后的CNN如图3所示。从左到右，首先将1D卷积层和最大池化层交替堆叠，它们实现了输入数据的特征提取和选择。然后连接一个全局最大池化层，计算每个通道提取的特征映射的平均值[26]。最后，将两个密集层连接起来，将CNN提取的特征映射到标签空间中。为了防止过拟合，在两个密集层之间添加了一个dropout层。最终的密集层在全频率区域输出实部和虚部的预测序列。

卷积层由几个卷积单元组成，用于从输入中提取不同的特征。1D卷积层的输入是一个3D张量，其中包含一组卷积核。核的每个元素对应于权值和偏置。内核定期扫描特征并对其进行操作，可以表示为：

$$\mathbf{Z}^{l+1}(t) = [\mathbf{Z}^l \otimes \mathbf{w}^{l+1}](t) + b \quad (6)$$

式中， \mathbf{Z}^l 和 \mathbf{Z}^{l+1} 分别表示卷积层 l 和 $l+1$ 的输入和输出；而 ω^{l+1} 表示第 $l+1$ 层的权重矩阵， b 表示偏置；而符号 \otimes 表示卷积算法，可以进一步表示为：

$$[\mathbf{Z}^l \otimes \mathbf{w}^{l+1}](t) = \sum_{k=1}^K \sum_{i=1}^L [\mathbf{Z}_k^l(s_0 t + i) \omega_k^{l+1}(i)] + b \quad (7)$$

式中 L 和 s_0 表示卷积层的参数，对应于核的大小和步幅； K 表示过滤器，即核的个数。在开发的CNN中，三个卷积层分别有16、32和16个滤波器，核大小为2。

最大池化层在卷积层之后对提取的特征进行进一步的降维。池化的本质是采样，以某种方式压缩输入，加快神经网络的收敛速度。虽然池化后数据大小减小，但由于输入的小平移，提取的特征几乎没有变化[27]。从数学上讲，最大池化层在某个窗口内输出输入的最大值。MaxPooling1D-1和MaxPooling1D-2的池化窗口大小为2。类似地，全局最大池化层计算每个通道的特征图上的最大值，以降低卷积层输出的特征图的维数。

为了增强所建立模型的非线性，整流线性单元(ReLU)作为卷积层和密集层的激活函数，其数学表达式为：

$$\text{ReLU}(x) = \begin{cases} x, & x > 0 \\ 0, & x \leq 0 \end{cases} \quad (8)$$

Dense层将学习到的分布式特征映射到标签空间，可以实现在其输入与其权矩阵的点积之后添加一个偏置的操作。然后对操作结果应用一个激活函数，表示为：

$$y_{\text{FC}} = \text{ReLU}(\omega_{\text{FC}} \cdot x_{\text{FC}} + b_{\text{FC}}) \quad (9)$$

其中 x_{FC} 和 y_{FC} 分别表示密集层的输入和输出； ω_{FC} 和 b_{FC} 分别表示权重矩阵和偏置向量。

最后一层致密层dense-2直接输出预测结果，不需要激活函数。其神经元的数量与预测数据的维数一致。此外，密集层可以

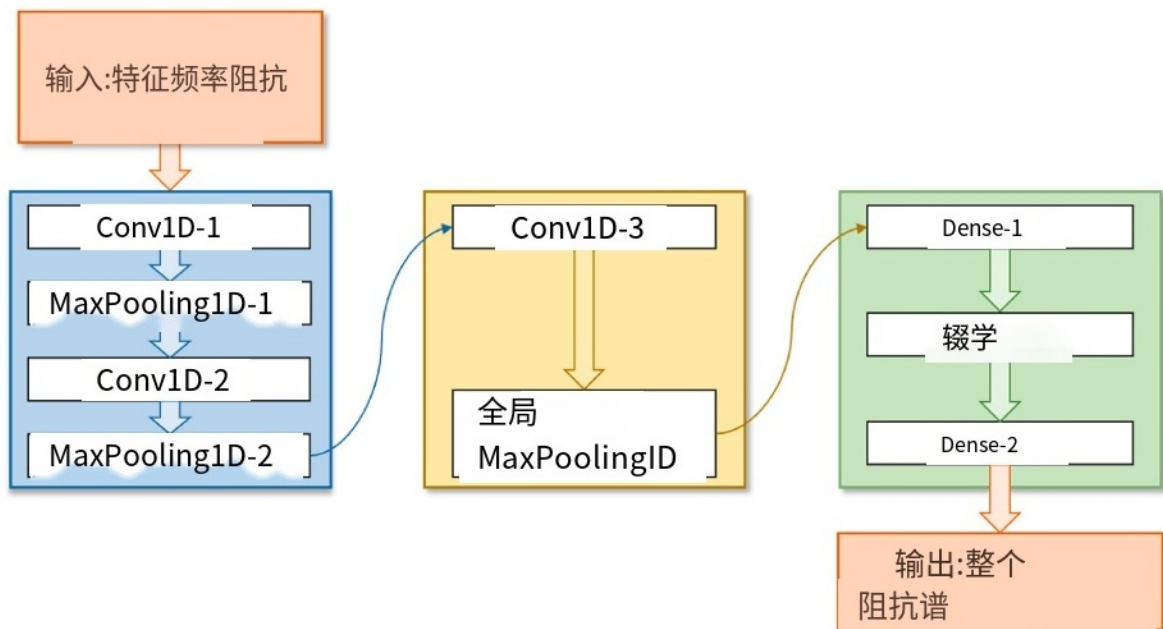


图3所示。发达CNN的框架。

在迁移学习中保持较好的模型能力，特别是当源域和目标域差异显著时[28]。layer dense-1和dense-2都有102个神经元。

Dropout层的应用是为了减少训练中的过拟合。其原理是将输入单元随机设置为零，以打破训练数据中的机会相关性。每个时间步长都使用相同的dropout掩码，这样网络就可以随着时间正确地传播学习误差。

2.2.2. CNN训练

利用相同SOC下的阻抗谱对开发的CNN进行训练。为了加速权值的收敛，提高模型的训练速度，在输入CNN之前，首先对训练输入序列进行归一化处理。

$$\begin{cases} Z'_{\text{norm}} = \left[\frac{Z'(f_{c1}) - Z'_m(f_{c1})}{Z'_s(f_{c1})}, \frac{Z'(f_{c2}) - Z'_m(f_{c2})}{Z'_s(f_{c2})}, \frac{Z'(f_{c3}) - Z'_m(f_{c3})}{Z'_s(f_{c3})}, \frac{Z'(f_{c4}) - Z'_m(f_{c4})}{Z'_s(f_{c4})} \right] \\ Z''_{\text{norm}} = \left[\frac{Z''(f_{c1}) - Z''_m(f_{c1})}{Z''_s(f_{c1})}, \frac{Z''(f_{c2}) - Z''_m(f_{c2})}{Z''_s(f_{c2})}, \frac{Z''(f_{c3}) - Z''_m(f_{c3})}{Z''_s(f_{c3})}, \frac{Z''(f_{c4}) - Z''_m(f_{c4})}{Z''_s(f_{c4})} \right] \end{cases} \quad (10)$$

其中 $Z'_m(f_{ci})$ 和 $Z''_m(f_{ci})$ 分别表示阻抗实部和虚部在特征频率 f_{ci} 处的平均值;而 $Z'_s(f_{ci})$ 和 $Z''_s(f_{ci})$ 分别表示特征频率 f_{ci} 处阻抗实部和虚部的标准差。

同样，训练输出序列也以同样的方式进行归一化。损失函数定义为预测序列 \hat{y} 与真实序列 y 之间的均方误差(MSE) be - tween。

$$J_{\text{MSE}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (y - \hat{y})^2 \quad (11)$$

其中 N 表示最小批处理大小。在本研究中， N 被设置为64，这意味着每次基于64个样本计算损失函数。

亚当优化器[29]用于最小化训练过程中的损失函数。亚当结合了Adagrad和RMSProp优化算法的优点，能够适应稀疏梯度，缓解梯度振荡问题。亚当算法的更新规则如下:1)计算时间步长 t 的梯度 g_t ; 2)计算梯度的指数移动平均 m_t ;3)计算梯度平方的指数移动平均 v_t ;4)修正 m_t 的偏差;5)校正 v_t 的偏差;6)更新参数，表达式如下:

$$\begin{cases} g_t = \nabla_{\theta} J(\theta_{t-1}) \\ m_t = \beta_1 m_{t-1} + (1 - \beta_1) g_t \\ v_t = \beta_2 v_{t-1} + (1 - \beta_2) g_t^2 \\ \hat{m}_t = m_t / (1 - \beta_1^t) \\ \hat{v}_t = v_t / (1 - \beta_2^t) \\ \theta_t = \theta_{t-1} - \alpha \cdot \hat{m}_t / (\sqrt{\hat{v}_t} + \epsilon) \end{cases} \quad (12)$$

其中 β_1 和 β_2 表示指数衰减率， α 表示学习率， ϵ 是为了避免分母为零而添加的一个非常小的数字。

开发的CNN在python上使用Keras进行2000次epoch的训练，随机选取35%的训练数据进行验证。

3. 数据集

使用两个退化数据集来验证所提出的方法，这两个数据集分别来自实验和公共数据。一个是

电池老化过程中的阻抗谱。测试了8个圆柱形电池在电池寿命期间产生的阻抗谱，标称容量为2.4Ah。电池的化学性质为NMC(LiNi_{1-x-y}CoxMnyO₂/石墨)。电池的下截止电压和上截止电压分别为3V和4.2V。所有电池在25 °C下以1C (2.4A)循环充放电。相关测试在Gamry Interface 5000P电化学工作站进行。各循环下进行的具体测试流程如下。首先将电池在1C下充电至截止电压上限，然后休息15分钟。阻抗谱是在完全充电状态(100% SOC)下测量的。然后将电池放电至较低截止电压，休息15分钟后在完全放电状态(0% SOC)下测量阻抗谱。EIS系统测试以恒流模式进行，频率范围为0.1Hz至10千赫，每十年10点，共51个频率。每个阻抗谱都包含该频率下的实部和虚部序列，涵盖了电池老化过程中的大部分电化学过程[3]。假设每个电池的容量损失小于80%。相应的，每个电池在100% SOC和0% SOC下分别产生196个阻抗谱。开发的CNN用6个电池的阻抗谱进行训练，并用剩下的2个电池进行测试。开发的数据集也已成功应用于容量退化的估计[5]。图4为老化过程中的EIS和容量演化。从图4(a)中可以明显看出，开发的数据集中电池的容量衰减明显。图4(b)显示了一个电池在电池退化过程中的阻抗谱。

另一个数据集来自公开可用的数据集[30]。对45mAh LR2032型锂离子硬币电池进行了EIS测量，电池化学成分为LCO (LiCoO₄/石墨)。数据集的详细信息可在补充说明2中找到。

4. 结果和讨论

4.1. 阻抗谱预测

由图2(b)所示第一周期阻抗谱得到的DRT曲线可知，对应于接触极化和SEI生长过程的峰谷分别为 5.58×10^{-4} s、 1.64×10^{-3} s、 4.10×10^{-3} s和 1.55×10^{-2} s。根据式(3)，计算出相应的频率分别为285.27 Hz、97.20 Hz、38.80 Hz和10.26 Hz。由于计算频率与实验频率并不完全一致，因此将特征频率识别为与计算频率最接近的实验频率。最后，阻抗的实部和虚部分别在第16 (319.60 Hz)、第21 (99.73 Hz)、第25 (38.11 Hz)和第31 (9.91 Hz)频率处作为输入。图5为100% SOC下的阻抗谱预测结果。均方根误差(Root mean square error, RMSE)用来评价阻抗谱的预测精度，其定义为:

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [(Z'_i - \hat{Z}'_i)^2 + (Z''_i - \hat{Z}''_i)^2]} \quad (13)$$

式中 Z'_i 和 Z''_i denote 为第 i 次频率的实部;和 \hat{Z}'_i and \hat{Z}''_i 表示第 i 次频率的虚部; N 表示频率的个数。

图5(a)和(c)显示了测试数据集所有阻抗谱的最大和最小rmse对应的阻抗谱。结果表明，预测结果与实际情况吻合较好，RMSE最大值为0.93 mΩ。测试数据集RMSE最小的预测阻抗谱与所有频率的真实值一致。在测试数据集的最大RMSE的情况下，预测的阻抗谱与高频的真实值略有不同。高频处的阻抗随

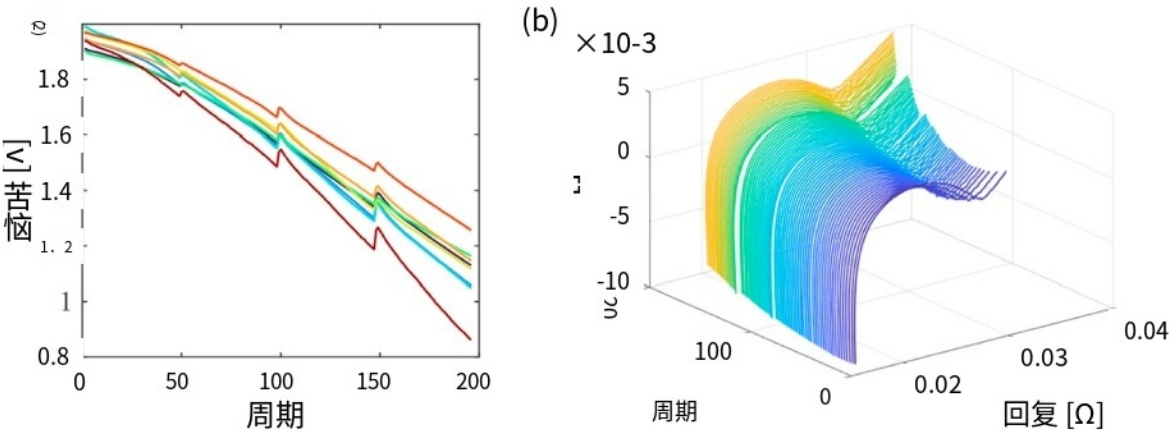


图4所示。开发数据集老化过程中的EIS和容量演化。(a) 8个电池的容量衰减轨迹。不同的颜色表示不同的电池。(b) 电池100%SOC老化过程中单个电池的EIS。(对于本图例中对颜色的参考解释, 请参考本文的Web版本。)

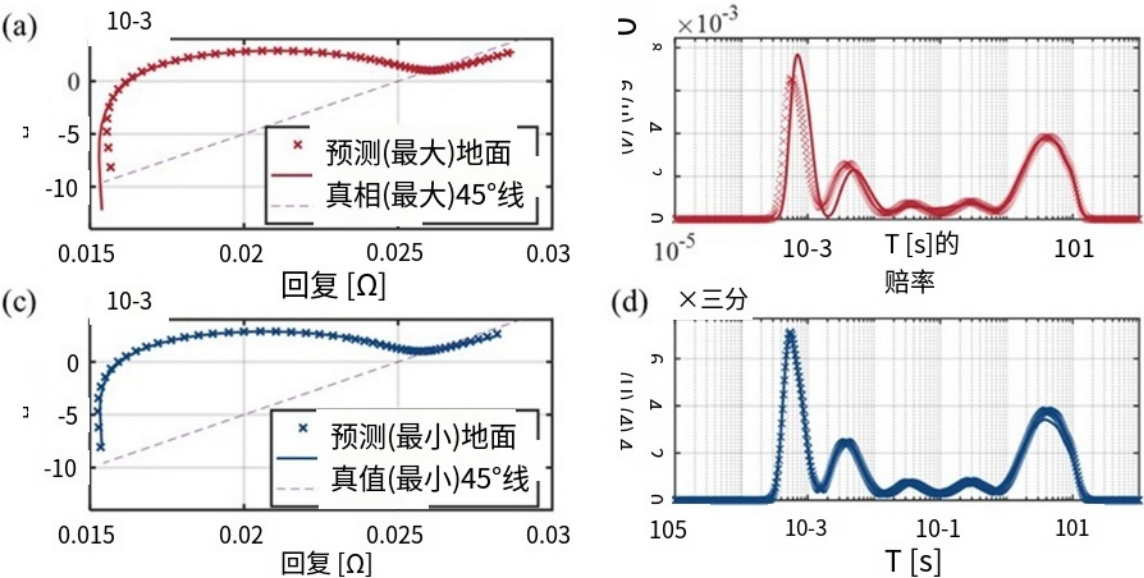


图5所示。NMC电池100%SOC时阻抗谱预测。(a)最大RMSE对应的预测值和真实值的奈奎斯特图。(b)最大RMSE下的DRT曲线。(c)最小RMSE对应的预测值和真值的奈奎斯特图。(d)最小RMSE下的DRT曲线。

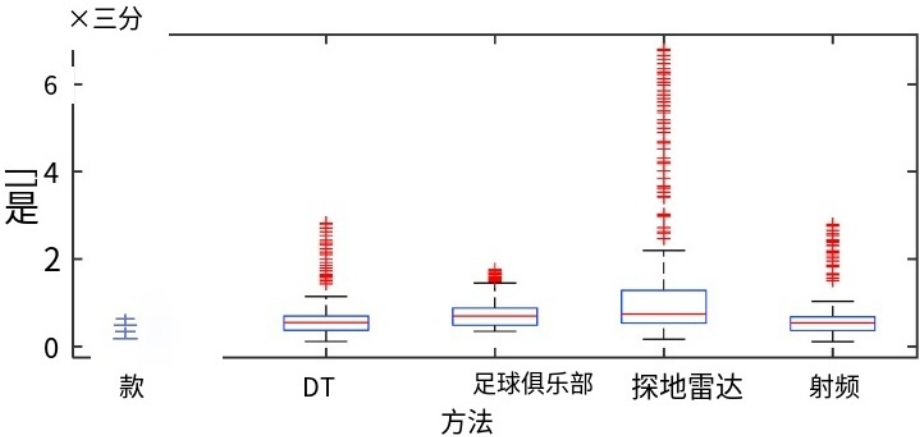


图6所示。不同机器学习方法下阻抗谱的RMSE。

电池类型, 主要与电缆和集电极的电感有关, 与电池的主要电化学反应无关[31]。为了进一步证明预测的准确性, DRT曲线如图5(b)和(d)所示。DRT结果进一步将电化学反应阻抗中呈现的时域信息数字化[3]。预测阻抗谱的DRT与实测阻抗谱具有相同的特征峰数, 且各电化学反应的时间常数和峰高与接地真实值吻合较好。在RMSE最大的情况下, 与实测值相比, 预测下高频范围内的峰值向右上方偏移。这与图5(a)的结果一致。

机器学习方法有不同的选择。为了辅助方法的选择, 将开发的CNN与决策树(DT)、全连接神经网络(FC)、高斯过程回归(GPR)和随机森林(RF)进行了比较。每种方法都使用与开发的CNN相同的输入数据。阻抗谱的预测误差如图6所示。可以看出, CNN在阻抗谱的预测中显示出最好的精度。GPR方法的最大RMSE超过6mΩ, 在5种方法中预测效果最差。相比之下, 本文方法的最大RMSE为0.93 mΩ, 是五种方法中预测效果最好的方法。CNN可以自动从原始阻抗数据中提取特征, 避免了传统机器学习方法中耗时且专业的特征工程。此外, CNN的权值共享增强了模型的泛化能力。以上特点使CNN具有较好的预测精度。

4.2. 针对不同电池状态和类型的迁移学习

阻抗谱随电池状态和类型的不同而变化。在电池管理中, 利用不同条件下的数据开发新的CNN耗时且成本高。阻抗谱的获取需要进行大量的电池测试, 尤其是在老化过

程中。如果开发的CNN可以很容易地适应各种状态和不同类型的电池, 使用少量的测试数据是有益的。这可以通过迁移学习来实现。迁移学习将从源领域学习到的知识应用到目标领域, 这可以需要更少的数据[32]。对于阻抗谱的预测, 迁移学习的实现依赖于不同锂离子电池相似的工作原理和EIS演化规律[33]。

迁移学习是一种优化方法, 在构建精确的模型以获得更好的性能时花费更少的时间, 主要通过特征提取和参数微调来完成[34]。基于特征的方法在输出层之前用训练好的网络提取通用特征向量。微调的目的是应用少量的目标样本来调整预训练网络的参数。根据目标数据集的大小和与现有源数据集的相似度, 可以采用不同的策略进行微调。一种方法是保持预训练模型的原始结构和初始权值, 并基于新的数据集训练模型。另一种方法是冻结预训练模型的前 k 层, 同时训练后面的层。或者, 当目标数据集很大且与源数据集不太相似时, 在初始化预训练模型的权重后, 从头开始训练模型[35]。在本研究的两个场景中, 不同状态下的数据相似度都比较高, 因此直接应用新数据来训练预训练模型是非常高效的。不同电池化学性质下的新数据与小规模的源数据集存在显著差异。预训练模型的前几层被冻结以保留关键信息, 后几层则被训练以适应不同的化学成分。不同状态和不同类型电池的预测过程如图7(a)所示。

案例1. 不同的州

如2.1节所述, 所选择的特征频率基本上不随SOC而变化。以不同的SOC为例, 首先应用100% SOC下的阻抗谱, 得到预阻抗

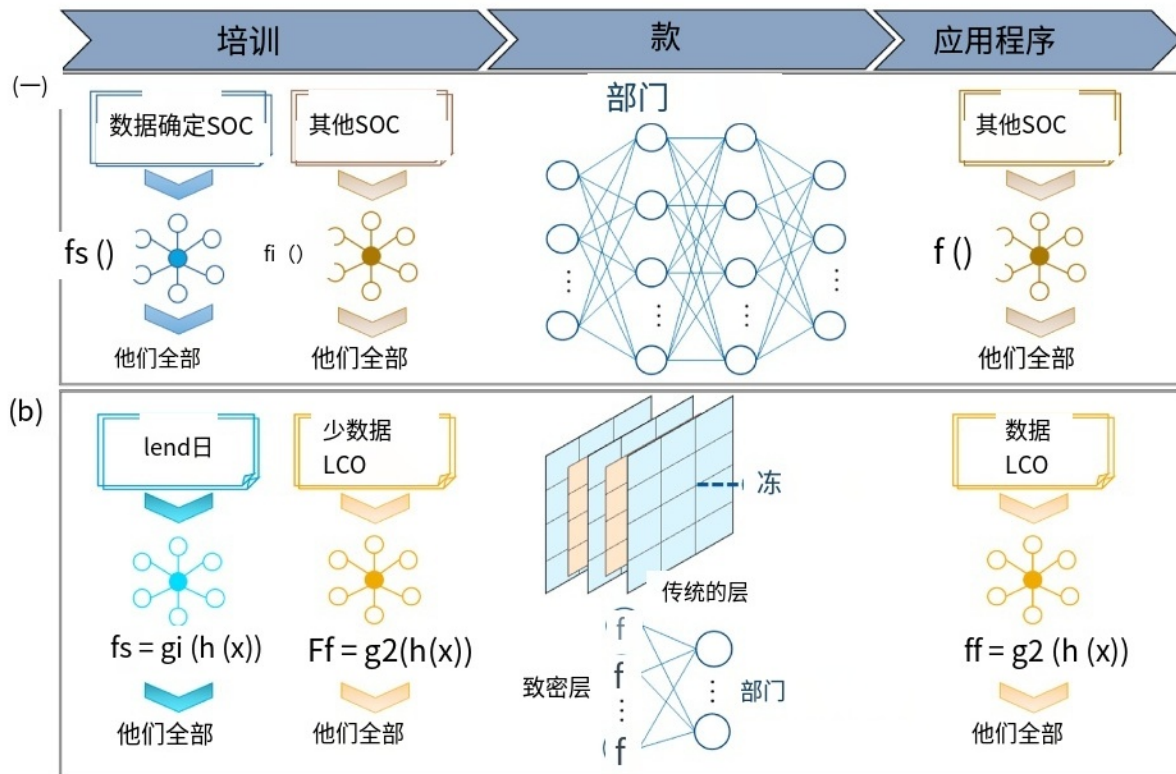


图7所示。迁移学习框架。(一)不同的州。(b)不同类型。

训练模型 $f_s(\boxtimes)$ ，然后用两块电池在0% SOC状态下的数据对模型进行训练，得到模型 $f_t(\boxtimes)$ 。最后，将训练好的模型 $f_t(\boxtimes)$ 应用于剩余6个SOC为0%的电池。训练过程中的epoch和batch大小分别为400和32。值得一提的是，本研究以100% SOC和0% SOC为例。在任何SOC下训练的模型都可以作为预训练模型，然后转移到其他SOC上。这样，就可以大大减少不同状态下所需的阻抗数据。减少60%以上的训练数据，也能获得很好的预测结果。

由于所选择的特征频率随SOC变化不大，因此仍然使用阻抗在第16、21、25和31个频率下的实部和虚部作为输入。采用NMC电池100% SOC下训练的CNN模型作为预训练模型。然后将2个电池在0% SOC下的数据再次训练预训练模型，并将训练好的模型应用于剩余的6个电池。图8 (a) ~ (c)为NMC电池0% SOC下的预测结果。可以看出，均方根误差最大值为1.01 m Ω ，最小值为0.38 m Ω 。大多数均方根误差都在1 m Ω 以内。以真实值为基准，最大相对误差小于3.68%。从DRT曲线来看，在这两种情况下，预测的DRT与实测的DRT非常吻合。在最小均方根误差的情况下，预测DRT与实测DRT之间的差异很小。对于最大均方根误差，预测中特征峰的数量和位置与地面真实值基本一致，峰高差异较小。

例2. 不同类型

考虑到EIS的差异，特征频率的位置需要根据新型的DRT曲线进行调整。在本研究中，我们使用了一个公开可用的数据集来探索两种类型之间的迁移学习。两个数据集的化学成分为NMC和LCO，而阻抗则在不同条件下进行了测试。显然，两个数据集的阻抗谱差异显著。由于LCO数据集的规模较小，迁移学习可以通过冻结卷积层和训练密集层来微调模型参数来实现。替换预训练模型中的密

集层，新密集层中的神经元数量与LCO数据集中阻抗谱的维数一致。不同电池化学性质下的迁移学习流程如图7 (b)所示。首先使用NMC数据集对模型 f_s 进行预训练，该数据集对应输入和输出之间的映射关系 g_1 。然后对模型 f_s 的卷积层进行冻结，用两个LCO电池的阻抗谱训练新的致密层，得到模型 f_t 。需要注意的是，模型 f_s 和模型 f_t 对应不同的映射关系，分别记为 g_1 和 g_2 。最后，利用训练好的模型 f_t 预测剩余LCO电池的阻抗谱。训练过程的epoch和batch大小分别为180和24。

利用相同的确定原理，确定了107.53 Hz、34.33 Hz、7.76 Hz和1.42 Hz，分别与第23 (115.78 Hz)、第28 (35.93 Hz)、第35 (6.98 Hz)和第42 (1.35 Hz)频率相匹配。同样，以NMC电池100% SOC下训练的模型为基准，调整输出致密层的尺寸以匹配LCO电池的阻抗谱。在冻结卷积层后，使用两个LCO电池的数据来训练致密层。这里使用的是公开数据集中状态I为25 °C的EIS，包括7节电池的可用数据。将训练好的模型应用到剩下的五个电池中，以获得迁移学习的结果。图8 (d) ~ (f)为迁移学习下LCO电池的EIS和DRT预测结果。可以看出，最大和最小均方根误差分别为0.11 Ω 和 $7.20 \times 10^{-3} \Omega$ 。以真实值为基础，最大和最小相对误差分别为6.66%和0.55%。均方根误差大致分布在0.05左右 Ω 。从DRT结果来看，在均方根误差最小的情况下，预测的DRT可以从峰值位置和峰值高度与实测DRT很好地匹配。这表明预测的DRT也可以准确地描述电池内部的基本电化学反应。在均方根误差最大的情况下，预测DRT不同电化学反应对应的时间常数与真实值相比略有偏移。在预测的DRT和测量的DRT之间，峰高也存在差异。均方根误差最大值出现在电池老化后期。大

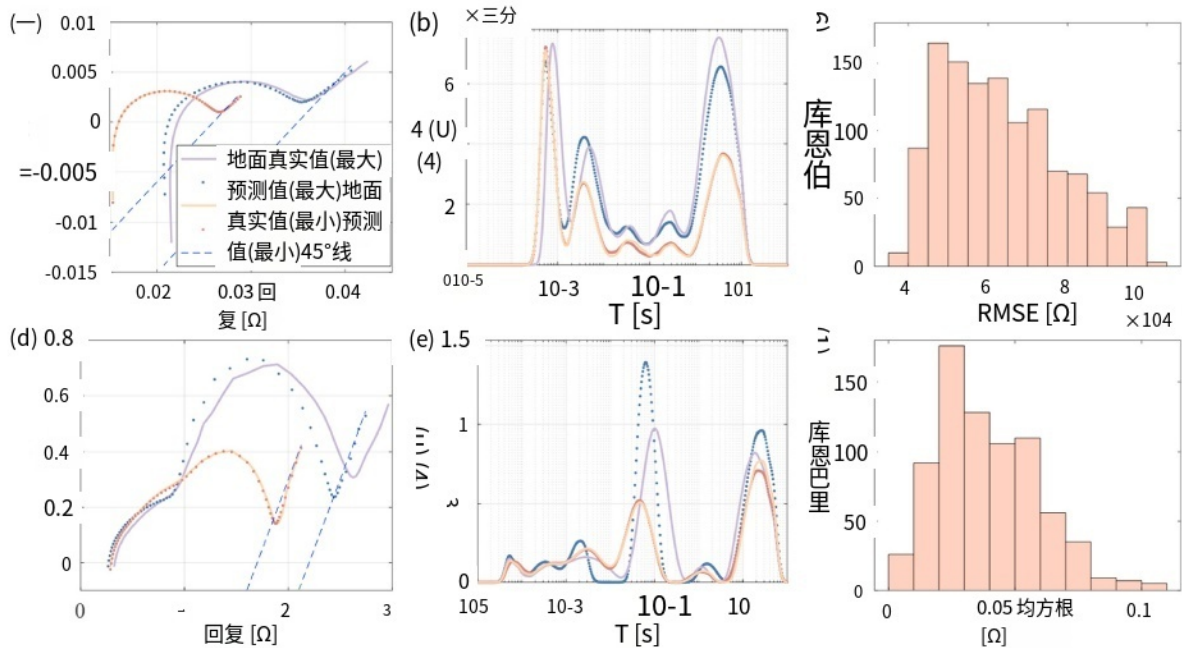


图8所示。迁移学习下阻抗谱预测结果。(a)和(b) NMC电池在0% 荷电状态下最大和最小RMSE对应的预测值和地面真值的Nyquist图和DRT曲线。(c) NMC电池在0% 荷电状态下的预测误差分布。(d)和(e) LCO电池最大和最小RMSE对应的预测和地面真值的Nyquist图和DRT曲线。(f) LCO电池的预测误差分布。

误差主要归因于NMC和LCO电池老化机制的差异[36,37]。从图8 (a)和(b)可以清楚地看出, LCO电池的电荷转移电阻比NMC电池明显增大。对于源域和目标域差异较大的问题, 需要不断开发新的解决方案[38]。

4.3. 其他应用程序

本文提出的方法仅通过测量几个特征频率的阻抗即可实现阻抗谱的快速预测, 适用于不同的电池状态和类型。在补充说明3中对特征频率下的阻抗变化进行了深入分析, 可以证明所提方法的可行性。全频阻抗谱为BMS系统带来了价值。与目前BMS收集的信号相比, EIS提供了更丰富的信息和更准确的电池内部状态预测。在退化诊断中, Zhang等[30]在不完全了解历史数据的情况下, 利用EIS准确估计容量并预测剩余使用寿命。与从充放电曲线中提取特征的方法相比, 可以实现更低的预测误差。Xiong等人[5]有效地应用了未标记阻抗谱来增强容量估计性能, 这可以显著降低收集容量数据的成本。在故障诊断中, Srinivasan等人[39]观察到在电池排气之前阻抗相角发生了显著变化, 早于电压突然变化的出现。以阻抗为中心的实验设计可以帮助理解电池的磁过程、微观结构和组成, 从而为电池机理提供新的视角[40]。更重要的是, 所提出的方法可以在未来进行扩展。阻抗谱也会受到温度和 c -速率的影响。借助数字双胞胎的概念, 有望在云中训练包含各种场景的综合数据集[41,42]。

5. 结论

为了实现宽带阻抗谱的快速采集, 提出了一种深度学习方法, 以在几个特征频率下测量的阻抗的实部和虚部作为输入, 预测全频区域的阻抗谱。得出的主要结论如下:

- (1) 针对包含8个电池在电池寿命期间的1568个阻抗谱的数据集验证了所提出的方法。预测阻抗谱能较好地反映地面真实情况, 最大RMSE为0.93 m Ω 。DRT曲线进一步从时域角度验证了预测阻抗谱的准确性。
- (2) 所开发的CNN可以用少量的数据适应各种电池状态和类型。在相同电池化学性质但SOC不同的情况下, 不需要调整特征频率。在100% SOC下训练的模型可以用两块电池的数据进行微调, 得到准确的预测结果, 最大RMSE为1.01 m Ω 。同样, 在不同的电池化学性质下, 100% SOC的NMC电池训练的模型是微调的。最大RMSE为0.11 Ω , 相对误差为6.66%。这使得所提出的方法更加灵活。

我们的方法可以降低板载测量的成本, 提高采集的可靠性, 可以在任何电池状态下使用快速测量的几个单频响应构建阻抗谱。在未来的工作中, 覆盖各种电池状态和类型的EIS模型将在云端进行训练并发送给车辆。

Credit author声明

rx构思了这个想法, 领导并监督了这个项目, 参与了论文的写作和修改, 并为所有共同作者提供指导。Y.S.构思、撰写、修改稿件。C.W. Methodology, Writing -review & editing. J.T.数据策展, 监督, 写作-审查和编辑。H. L.监督, 写作-审查和编辑。所有作者都对稿件进行了修改, 并对其内容表示同意。

利益竞争声明

作者声明, 他们没有已知的竞争经济利益或个人关系, 可能会影响本文中报道的工作。

数据可用性

作者没有共享数据的权限。

致谢。

本工作得到国家重点研发计划项目(2021YFB2402002)和北京市自然科学基金项目(L223013)的支持。

附录A.补充数据

本文的补充数据可以在<https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233414>网站上找到。

参考文献。

- [1] R. Xiong, K. Jonghoon, W. Shen, C. Lv, H. Li, X. Zhu, W. Zhao, B. Gao, H. Guo, C. Zhang, F. Sun, Key technologies for electric vehicles, *Green Energy and Intelligent Transportation 1* (2) (September 2022), 100041.
- [2] N. Meddings, M. Heinrich, F. Overney, et al., Application of electrochemical impedance spectroscopy to commercial Li-ion cells: a review, *J. Power Sources* (May) (2020) 480, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2020.228742>.
- [3] Y. Lu, C.Z. Zhao, J.Q. Huang, Q. Zhang, The timescale identification decoupling complicated kinetic processes in lithium batteries, *Joule* 6 (6) (2022) 1172–1198, <https://doi.org/10.1016/j.joule.2022.05.005>.
- [4] I. Babaeiyazdi, A. Rezaei-Zare, S. Shokrzadeh, State of charge prediction of EV Li-ion batteries using EIS: a machine learning approach, *Energy* 223 (2021), 120116, <https://doi.org/10.1016/j.energy.2021.120116>.
- [5] R. Xiong, J. Tian, W. Shen, J. Lu, F. Sun, Semi-supervised estimation of capacity degradation for lithium ion batteries with electrochemical impedance spectroscopy, *J. Energy Chem.* 76 (2023) 404–413, <https://doi.org/10.1016/j.jchem.2022.09.045>.
- [6] H.P.G.J. Beelen, L.H.J. Raijmakers, M.C.F. Donkers, P.H.L. Notten, H.J. Bergveld, A comparison and accuracy analysis of impedance-based temperature estimation methods for Li-ion batteries, *Appl. Energy* 175 (2016) 128–140, <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2016.04.103>.
- [7] S. Schindler, M. Bauer, M. Petzl, M.A. Danzer, Voltage relaxation and impedance spectroscopy as in-operando methods for the detection of lithium plating on graphitic anodes in commercial lithium-ion cells, *J. Power Sources* 304 (2016) 170–180, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2015.11.044>.
- [8] D. Zhu, T. Ma, Y. Yang, Optimization and application of the distribution of relaxation times based on characteristic frequency resolution and hyperparameters, *J. Power Sources* 545 (August) (2022), 231955, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.231955>.
- [9] P.K. Jones, U. Stimming, A.A. Lee, Impedance-based forecasting of lithium-ion battery performance amid uneven usage, *Nat. Commun.* 13 (1) (2022), <https://doi.org/10.1038/s41467-022-32422-w>.
- [10] X. Zhou, J. Huang, Impedance-Based diagnosis of lithium ion batteries : identification of physical parameters using multi-output relevance vector regression, *J. Energy Storage* 31 (March) (2020), 101629, <https://doi.org/10.1016/j.est.2020.101629>.
- [11] K. Mc Carthy, H. Gullapalli, K.M. Ryan, T. Kennedy, Electrochemical impedance correlation analysis for the estimation of Li-ion battery state of charge, state of health and internal temperature, *J. Energy Storage* 50 (March) (2022), 104608, <https://doi.org/10.1016/j.est.2022.104608>.
- [12] T.N. Gücin, L. Ovacik, Online impedance measurement of batteries using the cross-correlation technique, *IEEE Trans. Power Electron.* 35 (4) (2020) 4365–4375, <https://doi.org/10.1109/TPEL.2019.2939269>.
- [13] R. Ramilli, F. Santoni, A. De Angelis, M. Crescentini, P. Carbone, P.A. Traverso, Binary sequences for online electrochemical impedance spectroscopy of battery cells, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* 71 (2022), <https://doi.org/10.1109/TIM.2022.3196439>.

- [14] J.A.A. Qahouq, Z. Xia, Single-perturbation-cycle online battery impedance spectrum measurement method with closed-loop control of power converter, *IEEE Trans. Ind. Electron.* 64 (9) (2017) 7019–7029, <https://doi.org/10.1109/TIE.2017.2686324>.
- [15] R. Du, X. Wang, H. Dai, X. Wei, P.W. Ming, Online impedance spectrum measurement of fuel cells based on Morlet wavelet transform, *Int. J. Hydrogen Energy* 46 (47) (2021) 24339–24352, <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.05.012>.
- [16] J.P. Tian, R. Xiong, W.X. Shen, F.C. Sun, Fractional order battery modelling methodologies for electric vehicle applications: recent advances and perspectives, *Sci. China Technol. Sci.* 63 (11) (2020) 2211–2230, <https://doi.org/10.1007/s11431-020-1654-0>.
- [17] Y. Duan, J. Tian, J. Lu, C. Wang, W. Shen, R. Xiong, Deep neural network battery impedance spectra prediction by only using constant-current curve, *Energy Storage Mater.* 41 (5) (2021) 24–31, <https://doi.org/10.1016/j.ensm.2021.05.047>.
- [18] J. Guo, Y. Che, K. Pedersen, D.I. Stroe, Battery impedance spectrum prediction from partial charging voltage curve by machine learning, *J. Energy Chem.* 79 (2023) 211–221, <https://doi.org/10.1016/j.jechem.2023.01.004>.
- [19] X. Wang, X. Wei, J. Zhu, et al., A review of modeling, acquisition, and application of lithium-ion battery impedance for onboard battery management, *eTransportation* 7 (2021), <https://doi.org/10.1016/j.etrans.2020.100093>.
- [20] B.A. Boukamp, Distribution (function) of relaxation times, successor to complex nonlinear least squares analysis of electrochemical impedance spectroscopy? *JPhys Energy* 2 (4) (2020) <https://doi.org/10.1088/2515-7655/aba9e0>.
- [21] T.H. Wan, M. Saccoccio, C. Chen, F. Ciucci, Influence of the discretization methods on the distribution of relaxation times deconvolution: implementing radial basis functions with DRTtools, *Electrochim. Acta* 184 (2015) 483–499, <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2015.09.097>.
- [22] X. Zhou, J. Huang, Z. Pan, M. Ouyang, Impedance characterization of lithium-ion batteries aging under high-temperature cycling: importance of electrolyte-phase diffusion, *J. Power Sources* 426 (2019) 216–222, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2019.04.040>.
- [23] X. Wang, X. Wei, J. Zhu, et al., A review of modeling, acquisition, and application of lithium-ion battery impedance for onboard battery management, *eTransportation* 7 (2021), 100093, <https://doi.org/10.1016/j.etrans.2020.100093>.
- [24] X. Zhou, Z. Pan, X. Han, L. Lu, M. Ouyang, An easy-to-implement multi-point impedance technique for monitoring aging of lithium ion batteries, *J. Power Sources* 417 (2019) 188–192, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2018.11.087>.
- [25] J. Huang, Z. Li, J. Zhang, Dynamic electrochemical impedance spectroscopy reconstructed from continuous impedance measurement of single frequency during charging/discharging, *J. Power Sources* 273 (2015) 1098–1102, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2014.07.067>.
- [26] S. Kiranyaz, O. Avci, O. Abdeljaber, T. Ince, M. Gabbouj, D.J. Inman, 1D convolutional neural networks and applications: a survey, *Mech. Syst. Signal Process.* 151 (2021), <https://doi.org/10.1016/j.ymsp.2020.107398>.
- [27] Y. Zhang, Y. Miyamori, S. Mikami, T. Saito, Vibration-based structural state identification by a 1-dimensional convolutional neural network, *Comput Civ Infrastruct Eng* 34 (9) (2019) 822–839, <https://doi.org/10.1111/mice.12447>.
- [28] S.H.S. Basha, S.K. Vinakota, S.R. Dubey, V. Pulabagari, S. Mukherjee, AutoFCL: automatically tuning fully connected layers for handling small dataset, *Neural Comput. Appl.* 33 (13) (2021) 8055–8065, <https://doi.org/10.1007/s00521-020-05549-4>.
- [29] Z. Chang, Y. Zhang, W. Chen, Electricity price prediction based on hybrid model of adam optimized LSTM neural network and wavelet transform, *Energy* 187 (2019), <https://doi.org/10.1016/j.energy.2019.07.134>.
- [30] Y. Zhang, Q. Tang, Y. Zhang, J. Wang, U. Stimming, A.A. Lee, Identifying degradation patterns of lithium ion batteries from impedance spectroscopy using machine learning, *Nat. Commun.* 11 (1) (2020) 6–11, <https://doi.org/10.1038/s41467-020-15235-7>.
- [31] H. Sun, B. Jiang, H. You, et al., Quantitative analysis of degradation modes of lithium-ion battery under different operating conditions, *Energies* 14 (2) (2021) 1–19, <https://doi.org/10.3390/en14020350>.
- [32] A. Bhattacharjee, A. Verma, S. Mishra, T.K. Saha, Estimating state of charge for xEV batteries using 1D convolutional neural networks and transfer learning, *IEEE Trans. Veh. Technol.* 70 (4) (2021) 3123–3135, <https://doi.org/10.1109/TVT.2021.3064287>.
- [33] J. Tian, R. Xiong, W. Shen, J. Lu, X.G. Yang, Deep neural network battery charging curve prediction using 30 points collected in 10 min, *Joule* 5 (6) (2021) 1521–1534, <https://doi.org/10.1016/j.joule.2021.05.012>.
- [34] Z. Deng, X. Lin, J. Cai, X. Hu, Battery health estimation with degradation pattern recognition and transfer learning, *J. Power Sources* 525 (2022), <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.231027>.
- [35] N. Becherer, J. Pecarina, S. Nykl, K. Hopkinson, Improving optimization of convolutional neural networks through parameter fine-tuning, *Neural Comput. Appl.* 31 (8) (2019) 3469–3479, <https://doi.org/10.1007/s00521-017-3285-0>.
- [36] B. Stiaszny, J.C. Ziegler, E.E. Krauß, J.P. Schmidt, E. Ivers-tiff' ee, Electrochemical characterization and post-mortem analysis of aged LiMn2O4/Li(Ni0.5Mn0.2Co0.2) O2/graphite lithium ion batteries. Part I: cycle aging, *J. Power Sources* 251 (2014) 439–450, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2013.11.080>.
- [37] F. Leng, Z. Wei, C. Ming, R. Yazami, Hierarchical degradation processes in lithium-ion batteries during ageing, *Electrochim. Acta* 256 (2017) 52–62, <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.10.007>.
- [38] Q. Yang, Three challenges in data mining, *Front. Comput. Sci. China* 4 (3) (2010) 324–333, <https://doi.org/10.1007/s11704-010-0102-7>.
- [39] R. Srinivasan, P.A. Demirev, B.G. Carkhuff, Rapid monitoring of impedance phase shifts in lithium-ion batteries for hazard prevention, *J. Power Sources* 405 (September) (2018) 30–36, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2018.10.014>.
- [40] M. Gaber, Understanding Li-based battery materials via electrochemical impedance spectroscopy, Published online (2021) 19–22, <https://doi.org/10.1038/s41467-021-26894-5>.
- [41] X. Liu, L. Zhang, H. Yu, et al., Bridging multiscale characterization technologies and digital modeling to evaluate lithium battery full lifecycle, *Adv. Energy Mater.* 12 (33) (2022) 1–25, <https://doi.org/10.1002/aenm.202200889>.
- [42] C. Chen, R. Xiong, R. Yang, H. Li, A novel operational data-driven battery open-circuit voltage characterization mining method for large-scale applications, *Green Energy Intell Transp* 1 (1) (2022), 100001, <https://doi.org/10.1016/j.geits.2022.100001>.