

共起クラスタマイニングによる燃料電池の損傷パターン分析

Damage Pattern Analysis of a Fuel Cell by Co-occurring Cluster Mining

稲場 大樹^{*1*2} 福井 健一^{*2} 佐藤 一永^{*3} 水崎 純一郎^{*4} 沼尾 正行^{*2}
 Daiki Inaba Ken-ichi Fukui Kazuhisa Sato Junichiro Mizusaki Masayuki Numao

^{*1}大阪大学大学院情報科学研究科

Graduate School of Information Science and Technology, Osaka University

^{*2}大阪大学産業科学研究所

The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University

^{*3}東北大学工学研究科

Graduate School of Engineering, Tohoku University

^{*4}東北大学多元物質科学研究所

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

Solid oxide fuel cell (SOFC) is an efficient generator and researched for practical use. However, one of the problems is the durability. In this study, we research the mechanical correlations among components of SOFC by analyzing the co-occurrence of acoustic emission (AE) events which are caused by damage. Then we applied a novel method called “co-occurring cluster mining” for AE events, which we proposed for mining patterns from the numerical data such as AE. The proposed method extracts patterns of two clusters considering co-occurrence between clusters and similarity within each cluster at the same time. In addition, the dendrogram obtained from hierarchical clustering is utilized for the reduction of search space. The damage patterns which represent the major mechanical correlations were extracted in this research. Therefore, we can acquire novel knowledge about damage mechanism of SOFC from the results.

1. はじめに

近年、世界的な地球環境問題への取り組みや、エネルギー資源の有効活用の必要性から、燃料電池に対する関心と実用化への期待は日々高まってきている。燃料電池は低公害、静音性、高い発電効率などの特徴を持つ発電器であり、その中でも特に固体酸化物燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell : SOFC) は 70% 近い発電効率を持つため、実用化への期待が大きい燃料電池のひとつである。しかし、実用化の為にはいくつかの解決すべき課題が残されており、そのうちのひとつが信頼性の確保である [堀田 09]。

SOFC は高温 (600~1000 °C)、かつ高酸化・還元環境という過酷な環境で発電するため、構成部材の微細構造の変化、不純物質の付着、相互拡散などの化学的劣化に加え、構成部材のはく離やき裂などの物理的劣化が懸念されている [Krishnamurthy 04]。物理的劣化に関する研究は化学的劣化に関する研究よりもはるかに遅れており、SOFC の専門家にとっても未知な部分が多いといった現状である。

物理的損傷の評価法として、SOFC の破壊の際に発生する微弱な弾性波を波形信号として測定することで、破壊の様子を計測する手法が提案されている [佐藤 05]。この計測技術は一般に Acoustic Emission (AE) 法と呼ばれている。しかしながら、SOFC のように取得される AE 信号が大量かつ複数の損傷タイプに対応した種類をもつ場合は、人の手による解析は非常に困難であった。そこで我々は、データマイニングの手法によって、これら膨大な量の AE 信号を分類し、損傷の種類や部位を特定する研究を行っている。

先行研究として、福井らのカーネル自己組織化マップ (カー

ネル SOM) による損傷過程の可視化 [福井 10]、および、北川らの KeyGraph と密度推定による損傷の遷移とその時の重要事象の抽出 [北川 11] が挙げられる。しかしながら、これらの研究では主に損傷過程や損傷の遷移を対象としており、損傷の力学的な相関関係については未だほとんど解明されていない。燃料電池の物理的な劣化要因の特定のためには、このような力学的相関関係を明らかにすることは重要である。

そこで、本研究では燃料電池 (SOFC) の損傷時に発生する AE 事象を系列的に解析して、AE 事象間の共起関係を調べることで、共起する頻度が高い損傷パターンの抽出を行う。その際、AE 事象の系列から適切に損傷パターンを抽出するため、我々が提案した共起クラスタマイニングという手法を用いて、損傷パターンの抽出を行った。共起クラスタマイニングは、クラスタの範囲を決定する際に時間軸上における事象間の共起性を考慮しながら、AE 事象のような数値観測量のデータに対して共起関係の抽出が可能な手法である。これにより、燃料電池の部材間および部材内部の力学的相関関係を調べ、さらに詳細な損傷メカニズムの解明に貢献することを目的とする。

2. 損傷パターンの抽出

2.1 SOFC 損傷試験の概要

本研究でパターン抽出を行った AE データは、60 時間分の SOFC 損傷試験において得られたデータである。試験は図 1 に示す装置を用いて行われた。また、同時に図 1 は本研究における損傷パターン抽出のプロセスを示している。

まず、この試験では支持材であるガラスシールを融解させるために 800°C まで上昇させた。その後、徐々に室温まで降下させた^{*1}。AE の計測におけるサンプリングレートは 1MHz で、

連絡先: 稲場 大樹, 大阪大学産業科学研究所,

〒 567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 8-1,

Tel:06-6879-8426, Fax:06-6879-8428,

E-mail:d-inaba@ai.sanken.osaka-u.ac.jp

*1 本損傷試験は、実際の運転よりも温度を急激に降ろすことで損傷を恣意的に起こさせている。そのため、本論文の知見がそのまま開発や運用時に役立つものではないが、本手法の有効性を確認するの

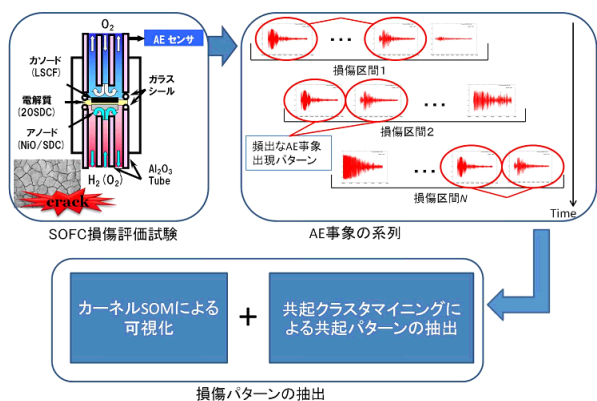


図 1: 損傷評価試験の概要

観測可能周波数は最大 500kHz である。計測時間 60 時間の間に統計的手法 [福井 10] により 1429 個の AE 事象が得られた。

本研究では AE 事象の周波数特性を利用するため、得られた AE 事象に先行研究同様の高速フーリエ変換 (FFT) による処理を施し、周波数スペクトルへの変換を行った。この処理により、3968 点の AE 周波数スペクトルデータ 1429 個を得た。

これに加え、提案手法を適用するために、先行研究 [北川 11] に従って一連の AE 事象系列をバスケット (損傷区間) に分割した。以上の処理によって、1429 個の AE 事象を 123 個のバスケットに分割した。

2.2 提案手法：共起クラスタマイニング

AE 事象のような数値観測量のデータにおいて、クラスタ間の共起に関するパターン抽出を行う場合、クラスタリングによって記号化し、パターン抽出を行う手法が考えられる。しかしながら、燃料電池の AE 事象のデータは、温度変化によって発生する AE 事象の特徴が少しずつ変化したり、複数種の損傷から生じた AE 事象や外乱の事象が混ざってひとつの AE 事象として観測されたりするため、クラスタの境界を明確に定めることが困難である。そのため、このうちの部材と共起している状態の AE 事象だけを個々に抽出するためには、事象間の時間的な相関関係を考慮に入れてクラスタを生成する必要がある。したがって、損傷パターンを抽出する際、従来のような単純にクラスタリングを行った後に共起パターンの抽出を行うといった方法では、適切に損傷パターンが抽出されない可能性がある。そこで、損傷パターンの抽出には、以前、我々が本研究のために提案した共起クラスタマイニング [稲場 12] を用いる。共起クラスタマイニングとは、時間軸上におけるクラスタ「間」の共起性とデータ空間上におけるクラスタ「内」の類似性を同時に考慮して、共起する 2 つのクラスタの範囲 (要素) を自動で決定する手法である。クラスタの範囲は階層型クラスタリングにおけるデンドログラムによって定められ、評価関数を最大化するようなクラスタの対、すなわちデンドログラムの部分木 (サブツリー) のペアを探索し、これらを共起パターンとして出力する。その様子を模式図として示したのが図 2 である。

提案手法の有効性については、我々が以前に行った人工データを用いた評価実験により示されている [稲場 12]。したがって、提案手法により、互いに共起した AE 事象のみを個々に抽出することが期待される。共起クラスタマイニングにおける目

には十分現実的なデータである。

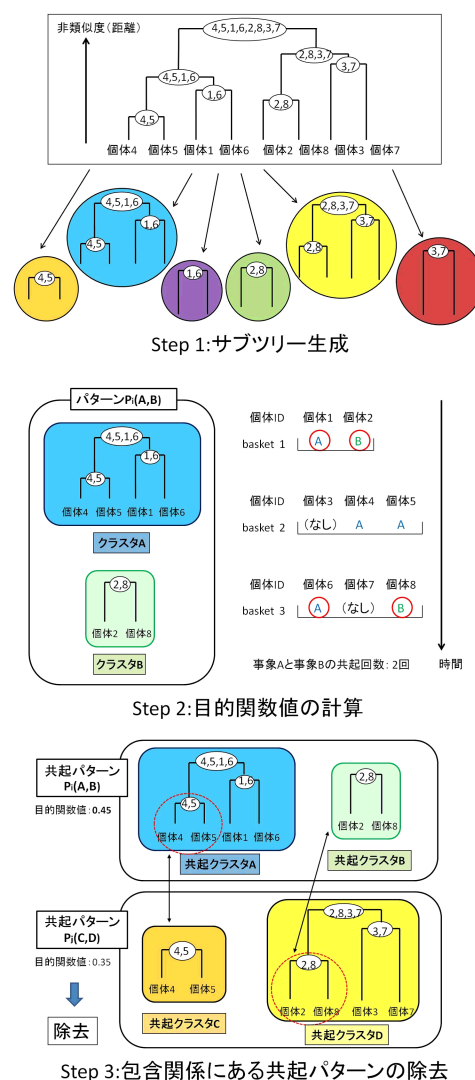


図 2: 提案手法のアルゴリズム模式図

的関数の設定、および各パラメータは上記の先行研究に従って決定した。

加えて、本研究では先行研究 [福井 10] で用いられているカーネル SOM による分類結果を用い、参照ベクトル (プロトタイプ) を個体ひとつと見なして階層型クラスタリングを適用した。自己組織化マップとは、教師なしの競合型ニューラルネットワーク学習であり、高次元の特徴空間に分布しているデータを低次元 (主に 2 次元) に縮約することで、データ全体の可視化がなされる。さらに、従来の SOM に対して、高次元へ写像することで線形の解析手法を非線形手法に拡張するカーネル法を用いて、データの表現力を向上させた手法がカーネル SOM [Boulet 08] である。カーネル SOM を用いることで、視覚的に損傷パターンの把握が容易になる他、得られる位相空間上で AE 事象の発生密度分布や、その時間的な変化も考慮しながら AE 事象から損傷パターンの結果を解釈を行うことが可能である。加えて、データ空間の量子化により、データ点数がプロトタイプ数に置き換わるため、共起パターンの探索の計算量が削減される利点もある。

用いたカーネルとしては、石垣ら [石垣 07] の研究におい

表 1: 抽出された損傷パターンとその個数 (損傷パターンの記号は表 2 の各領域に対応しており, 領域の間に位置するものは“,”で表す)

損傷パターン	個数	損傷パターン	個数
(B)-(B)	2	(E)-(F)	5
(B)-(C)	3	(E)-(A),(D)	3
(B)-(D)	2	(E)-(D),(E)	1
(B)-(E)	2	(F)-(A),(D)	1
(C)-(C)	1	(F)-(D),(E)	1
(D)-(D)	1	(A),(D)-(D),(E)	1
(D)-(E)	1	(D),(E)-(D),(E)	1
(E)-(E)	4		

表 2: カーネル SOM マップ上における損傷タイプ

領域	損傷タイプ
(A)	昇温期間に生じる構成部材のきしみ
(B)	初期欠陥や不均一性による小さな割れの進展
(C)	領域 (B) の進展に伴う構成部材のきしみ
(D)	電解質の亀裂
(E)	ガラスシールの損傷
(F)	電極材の亀裂に伴うはく離

て波形データに対しての有効性が示されている Kullback-Leibler(KL) カーネルを用いた。

3. 結果と考察

3.1 損傷パターン抽出結果

本節では, 燃料電池の損傷評価試験から得られた AE に対して, 提案手法を適用した結果を示す. カーネル SOM におけるニューロンのトポロジーは 2 次元正方格子, ニューロン数は 15×15 である. 燃料電池の AE 事象のデータ分布は複数の分布間にまたがった中間的なデータ点が多く, ほとんどのデータ点が密に連なっていると推測される. そのため, チェーン効果を起こさずなるべく均等大きさのクラスタの併合過程を生成する空間拡散の性質があることが望ましい. そこで, 階層型クラスタリングとして, 先行研究において空間拡散の性質が最も有効に働いた最長距離法を用いた.

まず, 抽出された損傷パターンについて示す. 損傷パターンは, 本手法により得られた AE 事象のパターンに対して, 著者のうち 2 名の燃料電池および材料力学の専門家により評価を行い, AE 事象のパターンから損傷パターンへの意味付けを行った結果である. 表 1 は取得された損傷パターンについて, 大まかに分類した結果である. パターン抽出のパラメータとして, 最小目的関数値 0.47, 最小支持度 0.04 とし, このとき抽出された損傷パターンは全部で 29 パターンであった. 抽出された損傷パターンのうち初期欠陥や材料の不均一性から生じる割れの進展が, 他の様々な損傷と共起していることが分かる. このことから, 初期欠陥や材料の不均一性は燃料電池の様々な損傷の起点となっているのではないかと推測される. また, (E)-(F) 間のパターンが最も多く抽出されていることから, ガラスシールの損傷と電極材の損傷には力学的に強い相関関係があるのではないかと考えられる.

さらに, 図 3 はカーネル SOM のマップ上において抽出された損傷パターンの一例を示した結果である. マップ上で記号で示した各領域と損傷タイプの対応は表 2 に示す. これらの損傷タイプ, および頻出期間は先行研究 [福井 10] の結果により把握されている. それぞれの損傷パターンを色分けして表し, 各損傷タイプにおける代表的な波形とその周波数スペクトルを共に表示してある.

3.2 考察

専門家が持つ知識を参照として妥当な結果 損傷パターン 1 の場合は, 初期欠陥や材料の不均一性から生じる割れの進展と, 電解質の損傷が共起している損傷パターンであると考えられる. マップ上端中央において発生している AE 事象は, 初期欠陥や材料の不均一性から生じる割れの進展が多発している期間のうち, 特に後期の期間でよく発生している損傷に由来した AE 事象であることが分かった. したがって, 損傷パターン 1 の結果より, 初期欠陥や材料の不均一性から生じた割れがある程度進展することで, 電解質の亀裂を生じさせていると推測される.

また, 損傷パターン 2 はガラスシール損傷と電極材の損傷が共起している損傷パターンであると考えられる. 電極材の損傷に影響を与えているのは, ガラスシールの損傷のうち後期の期間に発生している損傷であることが分かった. ガラスシールは温度によって状態が変化する部材であるが, 上記の期間では温度が低下してガラスシールの凝固が進んだ状態である. ガラスシールと電極材は構造上, 直接つながっていないが, ガラスシールの凝固により電池が収縮し変形して, 電極材に間接的に力学的な影響を与えているのではないかと推測される.

今まで気付かなかった結果 表 1 に示すように (D)-(F) 間のパターンが抽出されなかった. 電解質と電極材は構造上, 直接つながっているにもかかわらず, この 2 つの部材間での損傷パターンは抽出されなかった. この結果は, 専門家にとって興味深い結果であった. これは, 共起クラスタマイニングの性質上, 短期間に頻発している損傷のペアを抽出するのではなく, 長期間にわたって発生し続けている損傷のペアを抽出するため, 上記の損傷は発生期間が限られており, かつ発生期間が短かったため抽出されなかったと考えられる.

また, 損傷パターン 3 は領域の間にあるため, 従来までの研究では判明していない損傷の間で共起している損傷パターンである. これらの損傷は, いずれも低周波にピークを多く含む AE 事象を発生させているため, 領域 (A) と (D) の間に位置する損傷は電解質のはく離, 領域 (D) と (E) の間に位置する損傷は電解質またはガラスシールのはく離ではないかと考えられているが, 厳密には不明である. これは, 燃料電池の損傷に関して, 専門家も気が付いていなかった新たな事実である. 上記の損傷は, 従来までの AE 事象単体の発生頻度分布の分析からは発見されなかった損傷であり, AE 事象間の共起関係を考慮に入れることで, 初めて発見された.

損傷パターンとエネルギーの分布について また, 抽出された損傷パターンは初期欠陥の進展やガラスシールの亀裂を含んだパターンが多いが, 図 4 に示すように, これらの損傷で発生する AE 事象のエネルギーは他の損傷よりも大きい傾向にある. そのため, エネルギーの放出の大き

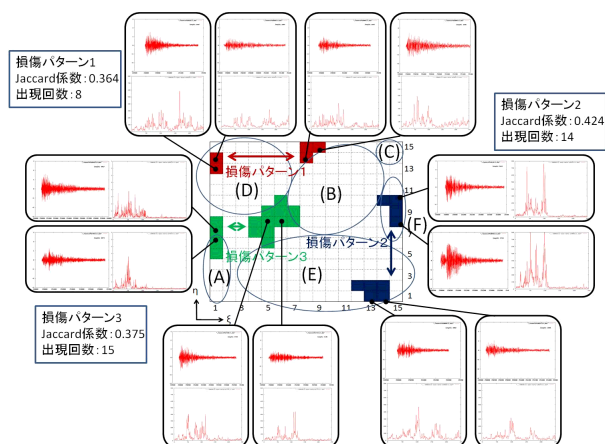


図 3: 抽出された損傷パターンの代表例 (中央はカーネル SOM による分類マップを示している)

な損傷が起こるほど、他の構成部材に及ぼす力学的な影響も大きいと推測される。

また、カーネル SOM の入力としては周波数スペクトルの離散点の距離のみであるにも関わらず、マップ上ではかなりまとまってエネルギーが分布していることが分かる。したがって、周波数スペクトルと AE 事象のエネルギーには何らかの相関があるのではないかと推測される。今後、これらの関係についてさらに詳細な分析を行っていく予定である。

4. まとめ

本論文では、数値観測量に対する新たな共起パターン抽出法である共起クラスタマイニングを提案した。この手法は、クラスタ「間」の共起性とクラスタ「内」の類似性を同時に考慮して、共起する 2 つのクラスタの範囲 (要素) を決定する手法である。提案手法を燃料電池における AE 事象に対して適用した結果、燃料電池における主要な力学的相関関係を示す損傷パターンが抽出された。得られた結果は、燃料電池の専門家も予想できなかった結果も含まれており、燃料電池の物理的な損傷メカニズムについての新たな知識が得られた。

今後の展望としては、本手法では 2 つの事象間のみで共起性を考慮していたが、Apriori を代表とする頻出パターン抽出の研究の流れと同様に、3 つ以上の事象間の共起性や、系列の前後関係や事象間の時間差を考慮するように拡張していくことが考えられる。

さらに、本手法は燃料電池の損傷評価試験から得られる AE だけでなく、地震波などの波形データや動画像における動点軌跡などの様々な数値観測量のデータに対して適用し、本提案法の汎用性を示していく予定である。

謝辞

本研究は「ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス」特別経費 (文部科学省)、および科学研究費補助金挑戦的萌芽研究 (24650068) の支援を受けて行われた。

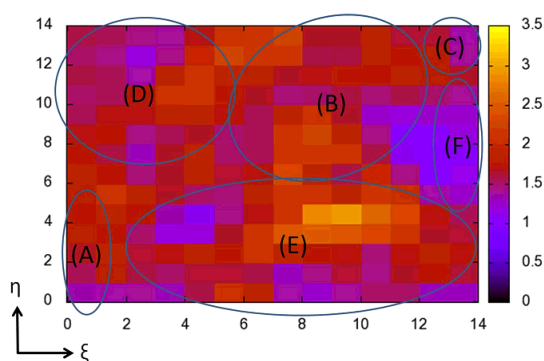


図 4: カーネル SOM マップ上における AE 事象の平均エネルギー分布 (エネルギー値は 10 の指数でレベル分けしてある)

参考文献

- [石垣 07] 石垣司, 樋口知之, 渡辺嘉二郎: Kullback-Leibler カーネルによる正規化周波数スペクトル判別とその圧力調整器劣化診断への応用, 電子情報通信学会論文誌 D, Vol. 90, No. 10, pp. 2787-2797 (2007)
- [稲場 12] 稲場大樹, 福井健一, 佐藤一永, 水崎純一郎, 沼尾正行: 燃料電池における損傷パターン抽出のための共起クラスタマイニング, 人工知能学会論文誌 特集「データマイニングとシミュレーション」, Vol. 27, No. 3, pp.121-132 (2012)
- [北川 11] 北川哲平, 福井健一, 佐藤一永, 水崎純一郎, 沼尾正行: キーグラフと SOM を用いた稀な重要事象抽出による燃料電池の損傷評価, 情報処理学会論文誌:数理モデル化と応用, Vol. 4, No. 2, pp. 1-12 (2011)
- [佐藤 05] 佐藤一永, 橋田俊之, 八代圭司, 湯上浩雄, 川田達也, 水崎純一郎: 模擬作動環境下における固体酸化物燃料電池の機械的損傷評価法の開発, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 113, pp. 562-564 (2005)
- [福井 10] 福井健一, 赤崎省悟, 佐藤一永, 水崎純一郎, 森山甲一, 栗原聡, 沼尾正行: 固体酸化物燃料電池における損傷過程の可視化, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 76, No. 762, pp. 223-232 (2010)
- [堀田 09] 堀田照之, 山地克彦, 岸本治夫, 横川晴美: 固体酸化物燃料電池の実用化に向けた課題と見通し (特に信頼性向上を目指した研究開発について), セラミックス, Vol. 44, No. 4, pp. 267-272 (2009)
- [Boulet 08] Boulet, R., Jouve, B., Rossi, F. and Villa, N.: Batch Kernel SOM and Related Laplacian Method for Social Network Analysis, *Neurocomputing*, Vol. 71, pp. 1257-1273 (2008)
- [Krishnamurthy 04] Krishnamurthy, R. and Sheldon, B.W.: Stress due to oxygenpotential gradients in nonstoichiometric oxides, *Journal of Acta Materialia*, Vol. 52, pp. 1807-1822 (2004)