

燃料電池における損傷パターン抽出

赤崎 省悟^{†1} 福井 健一^{†2} 佐藤 一永^{†3}
水崎 純一郎^{†3} 栗原 聡^{†2} 沼尾 正行^{†2}

近年、燃料電池に対する関心は非常に高まっている。中でも固体酸化燃料電池 (SOFC) は高い発電効率を持ち実用化が期待される発電器であるが、その実用化に向けては運転中に発生する劣化や損傷の診断が必須となる。これに対し現在、損傷の際に放出される弾性波を波形信号として取得することで物理的な損傷については観測が可能となった。この波形信号について、我々はデータマイニングの手法を用いて自動的に知識を抽出し、SOFC の損傷メカニズムを特定する研究を行ってきた。本研究は、損傷の発生する時系列に着目し、頻繁に発生する波形信号の系列パターンを抽出することで、実際にどのような損傷が起こっているのか、どのような損傷に時間的相関性があるのかを推定した。パターンの抽出においては、従来の記号データに対する系列パターン抽出手法を、非記号データである AE に適用できるように拡張を行った。

Extraction of Damage Patterns on Fuel Cell

SHOGO AKASAKI,^{†1} KEN-ICHI FUKUI,^{†2}
KAZUHISA SATO,^{†3} JUNICHIRO MIZUSAKI,^{†3}
SATOSHI KURIHARA^{†2} and MASAYUKI NUMAO^{†2}

Fuel cell is one of the energy generation systems of which practical use is expected. Especially, Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) has high generation efficiency. However it is an extremely important problem that deterioration occurs while SOFC is under operation. A technique measuring the mechanical damage of SOFC has been previously developed by using Acoustic Emission (AE) method. In this research, we aim to specify the damage patterns of SOFC from AE waves by utilizing Sequential Pattern Mining method. However, it is difficult to apply conventional Sequential Pattern Mining to AE data directly because each AE wave is "non-symbolic data". Therefore, we extended Sequential Pattern Mining so that it can apply to non-symbolic data.

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、その中でも固体酸化燃料電池 (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一つである。しかし、実用化の為にいくつかのクリアすべき課題が残されており、そのうちの 1 つが劣化診断である。

SOFC は高温 (600~1000)、かつ高酸化・還元環境という過酷な環境で発電するため、物理的な劣化や化学的変性などが発生することが懸念されている。これらの劣化要因を特定し、リアルタイムで診断できるシステムを構築することは SOFC の実用化に大きく貢献できると考えられる。このような劣化の診断方法として、近年、SOFC の物理的な損傷に対してはアコースティック・エミッション (AE) 法により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ことに成功している¹⁾。ここで取得される AE 信号は大量かつ複数の損傷タイプに対応した種類をもっており、人の手による解析は非常に困難である。そのため、我々はこれまで大量の AE データに対してデータマイニングの手法を適用する研究を行っており、非線形データの解析手法であるカーネル法を応用したカーネル SOM (自己組織化マップ) を用いて取得された AE を自動的に分類および可視化し、AE 事象と SOFC における損傷タイプの対応を把握することに成功した²⁾。

本研究では SOFC の損傷メカニズム解明において更に詳細な分析を目指し、AE 事象の類似関係だけでなくその発生順序や発生間隔を考慮し、どのような AE 事象の発生系列が頻繁に発生するかを自動的に抽出することで SOFC の損傷パターンを推定することを目的としている。これにより部材間の力学的影響関係の推定が可能となる。

ここで、順序をもった事象から成る大量の系列を含むデータの中から頻出の系列を列挙する手法としては系列パターン抽出 (Sequential Pattern Mining) があり、これは頻出の事象 (アイテム) の組み合わせを列挙する頻出パターン抽出 (Frequent Pattern Mining) に

^{†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} 東北大学多元物質科学研究所
Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

対しデータの発生順序を考慮した拡張をした手法である。

しかし、頻出系列パターン抽出や系列パターン抽出の手法は各事象が記号として表現できるものに限定されており、また各 AE 事象を人の目で記号化することは非常に難しいため、従来の手法をそのまま適用することはできない。更に、3 章で述べるように、AE 事象の中にはパターンに寄与しない、ノイズとなるものも含まれていることを考慮しなければならない上に、事象の順序だけではなくその時間間隔によってはパターンとみなすことが望ましくない系列も存在する。そこで本研究では、密度を考慮したクラスタリングである DBSCAN³⁾によりラベル付けを行うと同時にノイズとなる AE 事象を除去し、その後時間間隔を考慮した系列パターン抽出を行うことで、非記号データである AE に対して系列パターン抽出を適用できるように手法の拡張を行った。

抽出されたパターンはカーネル SOM 上で可視化することにより直感的な把握ができる。本研究では可視化されたパターンとその発生時期、温度帯などを照らし合わせるにより損傷パターンの推定を行った。その結果、SOFC の部材間における損傷の時間的相関関係について、詳細な分析を行うことが可能となった。

2. 従来の系列パターン抽出

頻出パターン抽出 (Frequent Pattern Mining) とは、複数の事象 (アイテム) から成る集合の中で一定以上の頻度で現れるアイテムの組み合わせ (パターン) を列挙する手法である。例えば、表 1 のようなデータベース D があるとき、各行がトランザクションを表しており、データベース中に含まれるアイテムの組み合わせについて、いくつかのトランザクション中で出現しているかを支持度 (support) という。この支持度が設定した閾値 ($minsup$) 以上の数のトランザクションにおいて出現しているものを抽出する。表 1 の例においては、 $minsup = 2$ としたとき、アイテム a は 2 つのトランザクションに含まれるので頻出であり、 (a, c) も 2 つのトランザクションに含まれるので頻出である。 (a, d) は TID100 にしか含まれないので頻出ではない。

頻出パターン抽出においてはトランザクション中のアイテムの順序は全く考慮されていない、しかし、実世界のデータでパターンを抽出したい対象にはアイテム間の順序を考慮する必要があるものが多く存在する。そこで考案された手法が系列パターン抽出 (Sequential Pattern Mining) であり、アイテムの順序が同じ頻出パターンのみを抽出することが可能となった。頻出パターン抽出の手法として有名なものには Apriori⁴⁾、系列パターン抽出においては Apriori をベースにした GSP (Generalized Sequential Patterns)⁵⁾ がある。

TID	Items
100	a c d
200	b c e
300	a b c e
400	b e

表 1 データベース D
Table 1 Database D

3. AE データに対する系列パターン抽出

3.1 AE 事象における系列パターンの定義

本研究では、AE 事象間の類似度を距離とすることによって定義される特徴空間上において、頻出である長さ L の系列を次のように定義する。

定義 1. 時系列で隣接する AE 事象が全て一定間隔以内である L 個の AE 事象から成る系列について、他の系列と比較した時に全ての l 番目 ($l=1, \dots, L$) の AE 事象同士の類似度が高い系列群を長さ L の系列パターンとする。

長さ 2 の系列の場合を図 1 を用いて表すと、系列 A と系列 B は先に発生した AE も類似しており、後に発生した AE も類似している。このような複数の系列を「頻出系列」であるとしている。特徴空間上においては、図 2 のように各 AE 間には別の AE に対する時系列上の相関関係 (出現する順番が隣り合っているかどうか) が存在しており、その順番が矢印として表されている。この中で本手法の定義において「頻出」であるものは、特徴空間上では図 3 のような系列である。しかし、ラベリングされないままの状態でのこのようなパターンを抽出するのは困難である上に、この定義において、特徴空間上で孤立した AE 事象はパターンに寄与しない (ノイズ) と見なすため抽出の前に取り除いておくことが望ましい。

本研究ではクラスタリングを用いて各 AE 事象のラベル付けを行うが、代表的なクラスタリング手法である k-means などは全てのデータを何らかのクラスタに分類する分割型クラスタリングであり、このような密度を考慮したクラスタリングには不向きである。そこで本研究においては、各 AE を類似度と密度を考慮してクラスタリングし、任意の形状のクラスタを生成できる DBSCAN を用いてラベリングとノイズの除去を同時に行った。その後、時系列の前後で AE がどのクラスタに含まれているかを比較するとともに、アイテムの発生する間隔について、ユーザーが指定した閾値以上の間隔の系列は考慮しないものとし頻出パターンの抽出を行った。

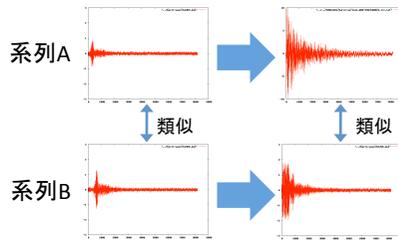


図 1 時系列の前後で類似した系列 (長さ 2 の場合)
Fig. 1 Sequences of AE events that each AE are similar

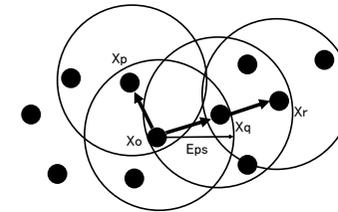


図 4 DBSCAN の概念図
Fig. 4 DBSCAN

ただし $N_{Eps}(x_p) = \{x_q \in X \mid D(x_p, x_q) \leq Eps\}$ であり, 点 x_p から距離 Eps 以内にある点の集合を表す. $D(x_p, x_q)$ は x_p と x_q の距離である. 図 4 において, 点 x_o は半径 Eps 内に 3 つの点を含むため x_p および x_q に DDR であるが, 逆に x_p から x_q へは DDR ではなく, この関係は対称なものではないといえる. そして, 図 4 の $x_q \rightarrow x_r$ や $x_o \rightarrow x_p \rightarrow x_r$ のように, 任意の seed 点となる対象から DDR な関係にある点を順次同じクラスタに分類していく. 新たに DDR な対象を見つけることができなければクラスタが極大になったとみなし, 別の対象を seed 点としてクラスタリングを行う. 最終的に全ての対象に対して新たに DDR な関係の対象を見つけることができなくなったところでクラスタリングを終了する.

3.3 AE 事象間の距離定義

本研究では, AE の周波数スペクトルを特徴量とした類似度を定義している. この類似度には, 周波数スペクトルを確率分布とみなすことで, 確率分布間の距離を示す尺度である Kullback-Leibler(KL) 情報量を用いている. KL 情報量は n 次元の周波数スペクトルを $x_i = (x_{i,1}, \dots, x_{i,n})$ としたとき次のように表される.

$$D_{KL}(x_i, x_j) = \sum_{k=1}^n x_{i,k} \log \frac{x_{i,k}}{x_{j,k}} \quad (3.3)$$

KL 情報量は確率分布を対象にしているため全ての AE 周波数スペクトルは総和を 1 に正規化してある. ただし, KL 情報量は対称な距離尺度ではない ($D_{KL}(x_i, x_j) \neq D_{KL}(x_j, x_i)$) ため, 今回は以下のように KL 情報量を対称化し, 距離として用いた.

$$SD_{KL}(x_i, x_j) = \sum_{k=1}^n \left\{ x_{i,k} \log \frac{x_{i,k}}{x_{j,k}} + x_{j,k} \log \frac{x_{j,k}}{x_{i,k}} \right\} \quad (3.4)$$

これまでの研究で用いてきたカーネル SOM においては, 類似度定義を行う関数である

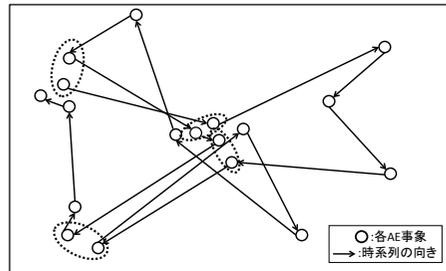


図 2 特徴空間における各 AE の時系列
Fig. 2 Sequence of items in feature space

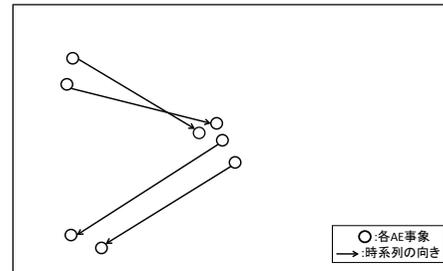


図 3 頻とみなされるパターン
Fig. 3 Patterns regarded as frequent

3.2 DBSCAN

DBSCAN は Ester らによって提案されたクラスタリング手法であり, 超球状ではない任意の形状のクラスタを抽出できる手法である. クラスタリングに用いられるパラメータは 2 つあり, Eps は距離の閾値, $MinPts$ は密度の閾値である. この 2 つのパラメータを用いて, ある対象の半径 Eps 以内に存在する点が $MinPts$ 以上存在すれば同じクラスタとみなしていく. この関係を直接密度到達可能 (DDR) であるという. クラスタリングは, ある seed 点からこの DDR な対象を推移的にたどることで生成できる極大集合を 1 つのクラスタとすることで行われる.

ある点 x_p から点 x_q が DDR であるとき, 次の条件をみたさなければならない.

$$x_q \in N_{Eps}(x_p) \quad (3.1)$$

$$|N_{Eps}(x_p)| = \{x_q \in X \mid D(x_p, x_q) \leq Eps\} \quad (3.2)$$

カーネル関数が KL 情報量に基づく関数であり、他のカーネル関数と比較して良い結果を示している⁶⁾。従って、本手法においても適切な類似度定義であることが期待できる。

3.4 系列パターン抽出のアルゴリズム

本節では DBSCAN によってラベリング及びノイズ除去された AE 周波数スペクトルの系列データに対して系列パターンを抽出する手法について説明する。従来の系列パターン抽出に基づいている部分は、まず長さ 1 の頻出系列を抽出し、頻出と見なされた系列だけを次の系列パターンの候補としていくという単調性、そして頻出の閾値 $minsup$ を用いるという点である。

- (1) DBSCAN によって形成されたクラスタのうち $minsup$ 以上の AE 事象を含むクラスタを長さ 1 の系列パターンとする。 $minsup$ を下回ったクラスタ内の AE 事象については、候補系列となっても頻出となることはないので以降の手順でパターン抽出を行わないものとする。頻出とみなされたクラスタについて、まず始点となるクラスタを任意に選択する。
- (2) 始点クラスタ内の AE 事象全てを長さ $l = 1$ の系列パターンとする。
- (3) 全ての系列パターンの末尾の AE 事象について、時系列で次に現れる AE 事象を参照し、その間隔が図 5 のように設定した時間の閾値 t を下回っていれば長さ $l + 1$ の系列パターンの候補とする。
- (4) 候補系列の末尾にある AE 事象のラベル (クラスタ) について、他の候補系列に同一のラベルを持つ系列が存在すれば頻出のカウントを行い、その数が $minsup$ を上回れば新たな長さ $l + 1$ の系列パターンとみなす。
- (5) 系列パターンが抽出されれば $l \leftarrow l + 1$ として手順 (3) に戻り、抽出されなければ現在のクラスタを始点とした処理を終了する。
- (6) 残りの全てのクラスタについて、それぞれを始点とし手順 (2) ~ (5) の処理を行う。

以上の手順によって全ての頻出クラスタを始点とする AE 事象の頻出系列パターンを抽出した。

4. SOFC 損傷試験と AE 信号の前処理

4.1 SOFC 損傷試験

本研究で系列パターン抽出を行う AE 信号データは、SOFC の損傷試験において得られたデータである。SOFC は図 6 のように電解質と 2 つの電極による三層構造をしており、この構造をセルと呼ぶ。前述のような高温環境で SOFC を長時間動作させると、セルの中に

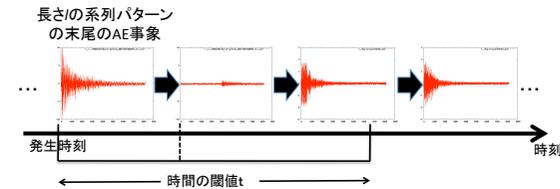


図 5 AE の発生時系列
Fig. 5 Sequence of AE events

様々な劣化や損傷が発生し、その弾性波が AE 信号となって取得される。また、セルにガスを送り込む管とセルとの間にガラスのリング (ガラスシール) を挟んでいるが、このガラスシールも温度変化により溶融、凝固するため AE を発生させる要因となる。

SOFC は前述のように高温環境で動作するため、AE は図 6 にあるようにセルに接触した管を伝わり、管に取り付けられた AE センサによって取得される。得られた AE はプリアンプとメインアンプにより増幅させ記録を行った。サンプリング間隔は 10^{-6} s、計測時間は 60 時間であり、温度は図 7 に示すように変化させた。

4.2 AE 信号の前処理

AE 信号とは物理的な損傷が発生する際に放出される弾性波が超音波として観測される信号であり、一つの長い信号中にある、定常状態から突出した振幅を持つ波形を表す。本研究ではまず前処理として定常状態に得られる波形を信号上のノイズとし、統計的手法を用いてそれぞれの AE 波部分を切り出した。その後、切り出された AE 波に対して、従来研究²⁾と同様の前処理を行い、長さ 3,968 点の AE 周波数スペクトルを 1,429 個得た。

5. 適用結果

本手法により抽出された頻出 AE 事象パターンについて、カーネル SOM 上で可視化した結果、そして AE 波形および周波数スペクトルを示す。カーネル SOM (15 × 15 のノード) による AE データの可視化結果については、これまでの研究においてマップ上のどの領域がどのような損傷に対応しているかを推定することができている (図 8, 表 2)。これによって可視化された AE 事象パターンの属する領域を参照することで、どのような損傷パターンであるかを推定することが可能になる。また、SOFC の損傷過程は 4 つのフェイズに分けられており、実験中のどの温度帯に対応しているかは図 7 に示されている。DBSCAN によるクラスタリングおよび系列パターン抽出におけるパラメータ {Eps, MinPts, $minsup$, t }

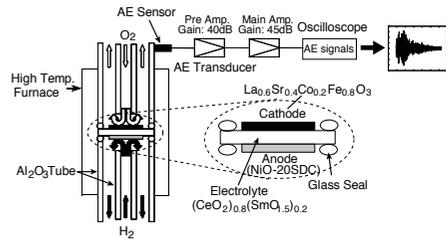


図 6 SOFC 損傷試験装置

Fig. 6 SOFC damage test and AE measurement apparatus

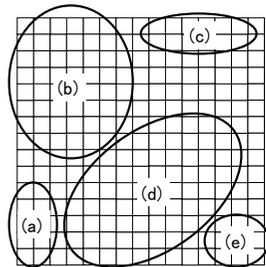


図 8 カーネル SOM 上の領域

Fig. 8 Area on Kernel-based SOM

について、MinPts は 2~4 で変化させながらそれぞれについて Eps を 0.150~0.300 まで 0.001 刻みで変化させた。minsup の値は頻度の少ないパターンについても全て抽出できるように 2 で固定した。t については、全 AE の時間間隔から決定した。これについては、ほとんどが 1 分以内であったことから、できるだけ時間的な相関性の高いものを抽出するため t = 30(s) で固定した。

全てのパラメータにおいて抽出されたパターンの中で、特にマップ上で方向や位置が近いと判断できるものが最も多く抽出できていた結果 {Eps, MinPts, minsup, t} = {0.285, 4, 2, 30} を以下に示す。矢印の方向が時系列の向きを示し、逆方向にも同じパターンが存在していた場合はまとめて表示している。矢印の中の数字は抽出されたパターンの数を示す。

結果

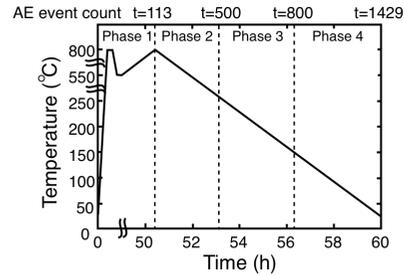


図 7 温度履歴および各フェイズとの対応

Fig. 7 Correspondence between AE occurrence process phase and temperature history

領域	フェイズ	対応する損傷のタイプ
(a)	1	昇温期間の部材のきしみ
(b)	2	初期欠陥による割れの進展
(c)	3	電解質の割れ
(d)	4	ガラスシールの割れ
(e)	4	電極のき裂・はく離

表 2 各領域に対応するフェイズと損傷のタイプ

Table 2 Relation between area and phase, type of damage

- フェイズ 1 の AE は発生間隔が長く、全てが時間の閾値 t を上回ったため頻出パターンとならなかった。
- フェイズ 2 の初期では、領域 (d) から領域 (a) に向かうパターンが抽出された (図 9)。フェイズ 2 の前半では、領域 (b) 内で起こるパターンと領域 (b), (d) 間のパターンが抽出されている (図 10)。フェイズ 2 の後半では、領域 (b) と (d) の境界におけるパターンや、領域 (b), (c) 間のパターンも出始めている (図 11)。
- フェイズ 3 は主に電解質及びガラスシールの損傷がメインの期間であるが、フェイズ 3 における AE の多くがノイズとみなされたり、DBSCAN においてほとんどが同じ巨大なクラスタとされた。これにより抽出されるパターンがカーネル SOM 上では全く離れたものであったりしたため、有用なものを見つけることができなかった。
- フェイズ 4 では、(b), (e) 間とみられるパターンが抽出されている (図 12)。

考察

フェイズ 2 初期 フェイズ 1 からフェイズ 2 への移行期であることから、初期欠陥による割れの進展 (領域 (b)) から部材のきしみ (領域 (a)) が誘発された可能性がある。

フェイズ 2 前半 図 10 における 1 番や 2 番のパターンのように、領域 (b) から領域 (d) に向かうパターンが多く抽出されているため、初期欠陥による割れの進展がガラスシールの割れを引き起こしている可能性が高いと考えられる。また、3 番のように (b) の内部でパターンが出ていることから初期欠陥による割れの進展には複数の種類がある可能性が考えられる。

フェイズ 2 後半 図 11 における 1 番のパターンから、初期欠陥による割れの進展が電解質の損傷にも影響を与えていると考えられる。また、領域 (b) と (d) の境界に存在する 2 番のパターンは、フェイズ 2 前半のものと同じであるのかまたはガラスシールとの相関を持つパターンであるのかを判断しづらいためより詳細な分析が必要である。

フェイズ 4 抽出されたパターンは (b), (e) 間のパターンのように見えるが、初期欠陥による割れの進展は収束していると考えられるので不自然である。そこで実際にマップの左上端ノードに含まれる AE 波形及び周波数スペクトルを分析したところ、(b) に含まれる AE とは全く異なるものであった。このことから、このパターンは電極と他の部材との損傷の関係性を示している可能性があるため、更に詳細な分析が必要である。これまでの研究においては、時系列におけるマップ上の発火の頻度によって損傷に対応する領域を決定してきたが、このような頻度は高くないが大きな意味を持つノードを発見することはできなかったため重要な発見である。ここで興味深い点は、電池の構造上はつ

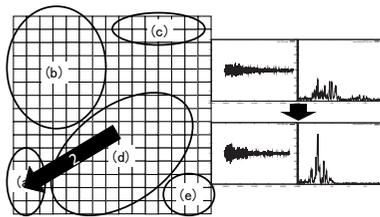


図 9 フェイズ 2 初期のパターン
Fig.9 Patterns in first part of Phase 2

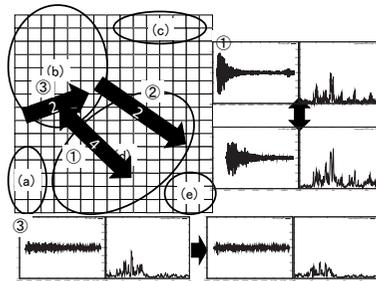


図 10 フェイズ 2 前半のパターン
Fig.10 Patterns in former part of Phase 2

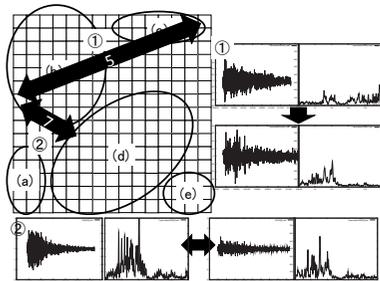


図 11 フェイズ 2 後半のパターン
Fig.11 Patterns in latter part of Phase 2

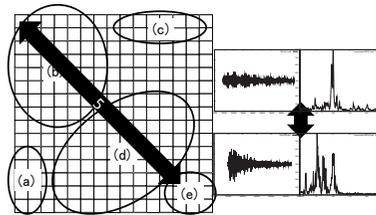


図 12 フェイズ 4 のパターン
Fig.12 Patterns in Phase 4

ながっている電解質と電極の間に系列パターンが存在しなかったことである。このことにより、電解質と電極についてはその損傷が直接影響を与え合うのではなく、他の何らかの要素を介して関係しているのではないかと考えられる。

DBSCAN について DBSCAN によるクラスタリング結果では、どのようなパラメータを用いてもフェイズ 2 の後半からフェイズ 3 の終わりにかけての AE 事象について巨大なクラスタを形成してしまった。これはチェーン効果によって、密度を持って広く分布する AE 事象が全て同じクラスタとされたためであると考えられ、これにより頻度の高い有用なパターンを抽出できなかつたと分析できる。

6. ま と め

本研究では、SOFC の損傷メカニズムについて、損傷時に得られる AE 信号の発生パター

ンを抽出することにより推定を行った。その結果、これまでは知ることのできなかつた電解質と電極における損傷の時間的相関関係など、より詳細な分析を行うことができた。今後は、クラスタリングと系列パターン抽出を同時に行うことで巨大なクラスタを生成することなく系列パターン抽出が可能な手法の探索や、パラメータの自動決定などが必要である。また、非記号データに対する系列パターン抽出はほとんど行われていないため、本手法を一般化し、AE データ以外のデータセットにも適用させていきたい。

謝 辞

本研究は文部科学省特別教育研究経費 (MSTeC)、関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団 (2008R020)、科学研究費補助金若手研究 (B)(21700165) の支援を受けて行われた。

参 考 文 献

- 1) 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).
- 2) 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* (2010). (in Press).
- 3) Ester, M., Kriegel, H.-P., Sander, J. and Xu, X.: A Density-Based Algorithm for Discovering Clusters in Large Spatial Databases with Noise, *Proc. of 2nd Int. Conf. on Knowledge Discovery and Data Mining*, pp.226-231 (1996).
- 4) Agrawal, R. and Srikant, R.: Fast algorithms for mining association rules, *Proc. of 20th Int. Conf. on Very Large Databases*, pp.487-499 (1994).
- 5) Srikant, R. and Agrawal, R.: Mining Sequential Patterns: Generalizations and Performance Improvements, *Proc. of 5th Int. Conf. on Extending Database Technology* (1996).
- 6) 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: カーネル SOM による損傷評価のための隣接性を考慮した分類性能評価, *情報処理学会論文誌:数理モデル化と応用*, Vol.3, No.1, pp.36-48 (2010).