

데이터 마이닝을 이용한 리튬 이차전지의 전류밀도 영향인자 분석

정동호* · 이종수* · 최하영**†

* 연세대학교 기계공학부, ** 동양미래대학교 기계공학부

Design Analysis of Current Density in Lithium Secondary Battery Using Data Mining Techniques

Dong Ho Jeong*, Jongsoo Lee* and Ha-Young Choi**†

* School of Mechanical Engineering, Yonsei Univ.,

** Dept. of Mechanical Engineering, Dongyang Mirae Univ.

(Received January 28, 2014 ; Revised March 28, 2014 ; Accepted March 28, 2014)

Key Words: Lithium-Ion Battery(리튬이온전지), Current Density(전류밀도), Data Mining(데이터마이닝), Decision Tree(의사결정나무), Artificial Neural Network(인공신경망), Weight Analysis(가중치분석)

초록: 본 연구에서는 데이터 마이닝의 방법인 의사결정나무와 인공신경망을 이용하여 리튬 이차전지의 전류밀도 특성에 대해 핵심 설계 인자를 도출하고 비교하였다. 먼저 의사결정나무-인공신경망 모델을 이용한 설계방법으로, 비선형성을 나타내는 초기 극판 설계인자들 중에 의사결정나무 모델을 통해 주요 설계 인자를 도출한 다음 인공신경망을 이용하여 설계인자들 간의 중요도와 전류밀도와의 가중치 분석을 수행하였다. 두 번째 방법은 인공신경망 모델만을 이용한 방법으로, 초기 설계인자들을 별도의 주요 인자 도출 과정 없이 모두 인공신경망을 구축하는데 사용하여 전류밀도와의 연관성 및 가중치를 분석하였다.

Abstract: In the present study, a decision tree and artificial neural network were used to determine critical design parameters for lithium ion batteries and compare their performances. First, a design method that used a decision tree-artificial neural network model was used to determine the major design factors among early pole plate design factors that showed nonlinearity. Then, the artificial neural network was used to implement a weighted value analysis of the importance of the design factors and their effect on the current density. The second method involved the use of an artificial neural network model to construct artificial networks without separate determinations of the major early design factors to analyze the connections and weighted values related to the current density.

1. 서론

화학적 에너지를 전기적 에너지로 변환시켜주는 장치 중 하나인 리튬 이차전지는 에너지 밀도가 높고 자연방전이 적으며 기억효과가 없기 때문에 핸드폰, MP3, 노트북 등과 같은 모바일 기기와 인공위성과 같은 다양한 분야에 적용되고 있다. 1990년대 핸드폰과 같은 모바일 기기의 등장과 함께 리튬 이차전지의 상용화가 시작되면서 전지관련

기술은 급속도로 발전하기 시작하였다. 이후 고유가와 지구온난화로 인해 전기자동차에 대한 관심이 커지면서 차세대 에너지솔루션으로 자리매김하였다. 전기자동차용 배터리로 최근 검토되고 있는 리튬 이차전지는 기존의 모바일용으로 사용되던 리튬 이차전지보다 더 우수하고 최적화된 용량과 출력, 안전성 등의 특성을 요구하고 있다.

리튬 이차전지에 대한 요구는 전자제품과 전기자동차 등의 분야에서 시간이 갈수록 증가하고 있다. 하지만 실제 리튬 이차전지의 성능발전 속도는 시장의 요구를 완벽하게 만족시키고 있지는 못하는 수준이다. 이는 전지의 성능에 대한 검증기간과도 연결이 되는데, 일반적으로 리튬 이차전지

† Corresponding Author, hychoi@dongyang.ac.kr

© 2014 The Korean Society of Mechanical Engineers

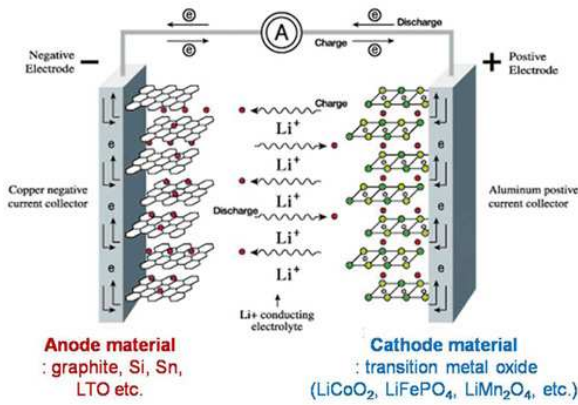


Fig. 1 Structure of lithium secondary battery⁽¹⁾

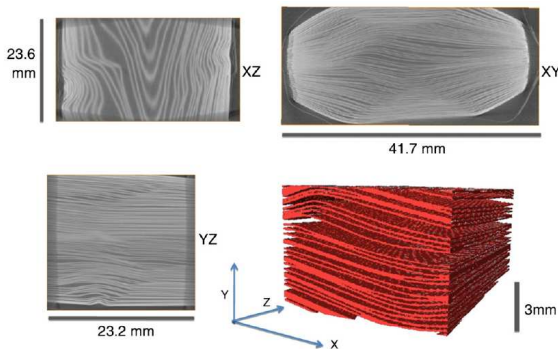


Fig. 2 Reconstructed cross sections and 3D region with clear separation of the layers of the failed battery⁽⁴⁾

의 성능을 정확하게 확인하려면 최소 6~12 개월 정도의 시간이 필요하다. 리튬 이차전지의 개발에 필요한 기간을 단축하기 위해 전지설계에 있어서 다양한 설계기법의 적용과 핵심 설계 요소를 찾는 것은 매우 중요하다.⁽²⁾

리튬 이차전지는 Fig. 1 과 같이 크게 방전시 전자를 방출하는 음극(Anode)과 충전 시 리튬이온을 내어놓는 양극(Cathode), 그리고 양극과 음극 사이에 전기적 절연역할을 하는 분리막(Separator), 이온의 이동을 가능하게 해주는 전해질(Electrolyte)로 구성된다.⁽¹⁾ 양극과 음극은 다시 전지의 반응에 관여하는 양음극 활물질(Active material)과 전극의 형상을 유지하고 전자의 흐름을 원활하게 하는 금속 박판으로 된 기재 또는 집전체(Current collector)로 구분된다. 대부분의 리튬 이차전지의 설계는 양극이나 음극의 활물질의 성분 또는 그 표면을 변경하여 효율이나 수명 등을 좋게 하는 것과 분리막 특성을 변경하여 안전성을 좋게 하는 것, 또는 전해질에 첨가물질을 추가하여 SEI(Solid Electrolyte Interphase)의 표면특성을 변화시키는 것이며 이러한 구성 요소들의 핵심 설계 요소를 찾

아내어 고객이 요구하는 수준의 성능을 만족하게 하는 것이다.^(3,4)

리튬 이차전지의 설계요소들은 단순히 전지의 전기화학적 특성만을 고려하는 것뿐만 아니라 실제 제조공정이나 사용 중에 발생할 수 있는 다양한 물리적인 특성변화를 함께 고려하여 설계가 되어야 한다. 그 대표적인 특성에는 전극의 변형, 전류밀도(Current density) 등이 있다.

전극 변형의 경우, 소형화되고 다기능화되는 최근 모바일 기기의 성능 요구를 만족시키기 위해서는 보다 비용량이 큰 전지가 필요하다. 이를 만들기 위해서는 동일한 부피에 조금 더 많은 활물질이 들어가야 하므로 전지 내부 용적에서 활물질이 차지하는 부피의 감소는 매우 중요한 요소 중에 하나가 된다. 그러나 과도한 부피감소는 활물질 내부의 스트레스를 증가시키는 요인으로 작용하여 이후 전지의 수명이 진행되는 도중에 극판 변형의 형태로 나타나거나, 장기간의 전지 충방전 중 가스 발생에 의한 변형으로 Fig. 2 와 같이 양극과 음극의 대면 불균일을 발생시켜 전지의 성능을 급속히 열화시키기도 한다.⁽⁵⁾

전류밀도의 경우, 전기가동차용 리튬이차전지의 경우 비용량이라 불리는 단위 질량당 용량은 자동차의 차체 하중과 연관되며 차량 연비와 같은 성능과도 직접적인 연관성이 있으므로 일반 모바일 용 전지의 설계보다 더욱 민감한 문제라고 할 수 있다. 따라서 전지 설계에 사용되는 수많은 변수들 중에서 전류 밀도에 영향을 주는 다른 설계인자를 도출하는 것은 매우 중요하다.

따라서 본 논문에서는 데이터 마이닝(Data mining)과 소프트컴퓨팅(Soft computing) 기법 중 하나인 의사결정나무(Decision tree)와 인공신경망(Artificial neural network)을 이용하여 리튬 이차전지의 핵심 설계 인자를 도출하였고 각 방법간의 결과에 대해 비교하였다.

2. 데이터 마이닝

2.1 의사결정나무

의사결정나무는 데이터 마이닝 모델링 기법들 중에서 가장 명료하며 결과에 대한 해석이 용이한 모델로 알려져 있다. 의사결정나무 모델은 관측치들을 하위 그룹으로 분류해 나가는 절차를 기반으로 한다. 예측변수인 각 노드의 변수와 그 기준값들을 중심으로 하위그룹으로 분할된다. 즉, 의사결정나무는 의사결정규칙을 도표화하여 관심대상이 되는 집단을 몇 개의 소집단으로 분류 또는 예

측하는 분석방법이다.⁽⁶⁾ 의사결정나무는 단순한 형태로 인해 해석이 매우 용이하며 두 개 이상의 변수가 결합하여 목표 변수에 어떻게 영향을 주는지를 쉽게 알 수 있다. 또한, 연속형 변수인 경우 노드의 분할값을 기준으로 분류하기 때문에 특이값과 같은 이상치에 민감하지 않은 장점은 가지고 있지만 예측 오류가 클 수 있다는 단점을 가지고 있다. 본 논문에서는 의사결정나무 자체의 분석값에 대한 의미보다는 초기 여러 개의 입력변수 중 분할되는 노드의 변수를 유의미한 변수로서 추출하는데 관심을 가지고 분석을 진행하였다.

2.2 인공신경망

일반적으로 신경망이론은 학습 데이터의 양에 대해서 영향을 많이 받으며, 충분한 데이터를 가지지 못한 영역에 대한 예측능력은 충분한 데이터를 가지고 있는 영역에 비해 상대적으로 현저히 떨어지는 경향이 있다.⁽⁷⁾ 역전파신경망(Back-propagation neural network, BPN)의 학습과정을 통하여 회로망 사이에 상호 연결가중치 행렬을 얻을 수 있으며, 해당 행렬로 입출력 데이터 사이의 기여도를 파악하고 설계인자와 함수 간의 인과관계를 파악할 수 있다. 이를 통해 가중치 해석행렬을 생성할 수 있고, 전역민감도(Global sensitivity)에 대한 정보를 제공한다.⁽⁸⁾

2.3 비교방법

본 연구에서는 리튬 이차전지의 설계에 있어서 설계기법 적용과 핵심 설계인자를 도출하고 비교하였다. 먼저 의사결정나무-인공신경망 모델을 이용한 설계방법으로, 비선형성을 나타내는 초기 극판 설계인자들 중에 의사결정나무 모델을 통해 주요 설계 인자를 도출한 다음 인공신경망을 이용하여 설계인자들 간의 중요도와 목표 설계인자인 전류밀도와의 연관성을 분석하였다. 그리고 두 번째 방법은 인공신경망 모델만을 이용한 설계 방법으로, 초기 설계인자들을 별도의 주요인자 도출 과정 없이 모두 인공신경망을 구축하는데 사용하여 목표 설계인자와의 연관성을 분석하였다.

3. 실험과 결과분석

3.1 전류밀도 설계변수

리튬 이차전지의 설계에 있어서 가장 중요한 것은 요구되는 성능을 만족시키기 위해서 다양한 설계변수를 입력하였을 때 그 입력변수 값들이 제품의 성능에 어떤 식으로 영향을 주고 있는지 여부

와 최종제품이 완성되기 전에 공정상에서 미리 반제품(Semi-product)상태에서 요구성능을 미리 알 수 있는지 여부이다. 전기화학적 설계 변수로는 단위면적당 가용전류의 양을 표현하는 전류밀도, 양음극 대면적의 용량비, 양음극 활물질의 비용량 등이 있다. 그리고 공정 반제품 변수에는 기재 또는 집전체의 표면에 도포된 활물질의 양이나 구현된 극판의 두께 등이 있다.

본 논문에서는 전지제조 공정 중 극판 공정 단계에서 16 개의 다양한 입력변수와 1 개의 출력변수인 전류밀도를 선정한다. 의사결정나무를 통해 1 차 유의한 변수를 추출하여 인공신경망을 통해 근사화해서 설계 핵심인자를 도출한 결과와 16 개의 입력변수를 인공신경망만을 통해 근사화하여 설계핵심인자를 도출하여 비교 분석하였다. 출력변수인 전류밀도를 제외한 나머지 초기 16 개 입력 변수는 Table 1 과 같다. Conductive Agent 와 Binder 는 Mixing 공정 중 투입 소재 종류이며, Thickness1 와 D-parameter1 는 Coating 공정 중 두께와 극판 밀도 설계 인자이다. Thickness2, P ratio 와 D-parameter2 는 각각 Press 공정 중 두께, 압연율과 극판 밀도 설계 인자이고 Range, Hydro-content1, Attachment1 와 Deformation1 는 각각 Slitting 공정 중 전극 dimension 인자, 수분함량관련 인자, 기재와 재료간의 부착력과 극판 변형이다. Thickness3, Darkness, Hydro-content2, Attachment2 과 Spring back 은

Table 1 Design variables for current density

Abbreviation	Full Name
Conductive agent	electro-conductivity factor
Binder	electrode material binding factor
Thickness1	1 st thickness factor
D parameter1	1 st electrode design parameter factor
Thickness2	2 nd thickness factor
P ratio	Press ratio factor
D parameter2	2 nd electrode design parameter factor
Range	Electrode area factor
Hydro content1	1 st hydro-content factor
Attachment1	1 st attachment factor
Deformation1	1 st deformation factor
Thickness3	3 rd thickness factor
Darkness	Electrode surface darkness factor
Hydro content2	2 nd hydro-content factor
Attachment2	2 nd attachment factor
Spring back	Electrode stress release factor

각각 Vacuum Drying 공정 중 제품 두께, 극판 표면 darkness, 수분함량인자, 기재와 재료간의 부착력과 이전 공정과의 두께차이이다.

3.2 의사결정나무-인공신경망 모델

일반적으로 많은 수의 입력 노드를 가지는 인공신경망 모델은 그렇지 않은 모델에 비해서 보다

Table 2 Design variables selected from decision tree

Variable	Name
Input factor 1	Thickness1
Input factor 2	D parameter2
Input factor 3	Thickness2
Input factor 4	Darkness
Input factor 5	D parameter1
Input factor 6	Deformation1

Table 3 Elements of artificial neural network (decision tree and BPN)

Number of input nodes	6
Number of hidden layers	1
Number of hidden layer nodes	6
Number of output nodes	1
Number of training data	756 (90%)
Number of test data	84 (10%)
Learning rate	0.9
Gradient of sigmoid function	0.9
Convergence criteria	0.005

계산시간 등을 필요로 하게 되어 더 많은 자원을 소모하게 만든다. 또한 일반적으로 BPN 은 입력변수 10 개 정도의 수준에서 최적의 결과를 보이는 것으로 알려져 있다.

16 개의 입력변수와 출력변수를 전류밀도로 하는 모델을 구축하여 의사결정나무 분석을 통해 의미가 있는 것으로 판단되는 노드의 변수를 BPN의 입력변수로 선정하였다.

본 논문에서는 여러 개의 의사결정나무 이론 중 CART (Classification and regression tree) 알고리즘을 이용하여 진행하였으며, 전체데이터 중 90%를 학습에 사용하고 10%를 근사화 검증테스트에 사용하였다. 측정의 정확도 분석은 평균제곱오차를 이용하여 실시하였다. F-검증을 분리기준으로 하여 유의수준은 0.2, 최대 깊이(Maximum depth of leaf)는 4 로 설정하고 SAS 9.2 의 Enterprise Miner⁹⁾를 이용하여 목표 변수에 대한 분석을 진행하였다. 목표 변수인 전류밀도에 대한 평균제곱오차가 가장 작은 11 개의 말단 노드(Terminal node)를 가진 의사결정나무가 Fig. 3 와 같이 성장하였다. 의사결정나무모형에서 각 노드의 분류는 연속형 변수에 대한 분류이므로 F-검정 또는 분산의 감소량을 기준으로 진행되며 분류기준 자체는 하나의 유의미한 변수로 받아들일 수 있다. 따라서 본 의사결정나무모델을 통해 초기 16 개의 설계 변수들 중에서 Table 2 와 같이 총 6 개의 인자를 추출하였다.

이렇게 추출된 인자들은 인공신경망의 입력층의 입력값으로 사용하였다. 은닉층은 입력층과 동일한 6 개의 노드를 사용하였으며, 활성화 함수는 시그모이드 함수를 사용하였다.

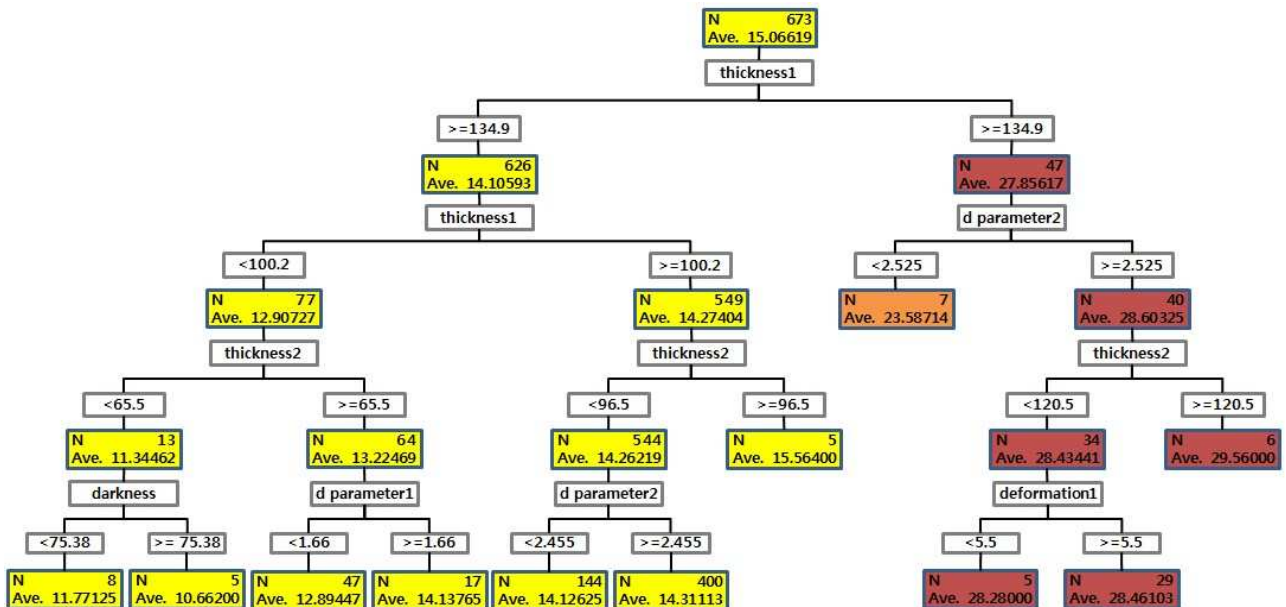


Fig. 3 Decision tree of current density

인공신경망은 Table 3 과 같은 조건으로 수행되었다. 인공신경망을 수행하는데 3,492sec 가 소요되었으며, 이 때 Y-RMSE(Y-root mean square error)값은 0.0004955 가 나왔다. 추론된 Y 값을 아래의 Fig. 4 와 같이 테스트 데이터 값과 검증해 보았다. 이 때 결정계수인 R-square 값이 0.9846 을 나타내며 기울기는 1.2662 를 나타내었다. 실제 복잡한 현상을 근사화한 것을 고려한다면 추론된 Y 의 값이 실제 테스트 데이터 값과 어느 정도 잘 일치하는 것으로 볼 수 있다. 하지만, 실제 설계나 공학문제와 같은 분야에 적용하기에는 학습이 부족한 것으로 생각된다. 추론된 데이터가 0.2 이하인 구간에서는 테스트 데이터와 잘 일치하고 있으나 0.4 이상의 구간에서는 테스트 데이터와 어느 정도의 거리가 있어 추론에 한계가 있을 것으로 판단된다.

Table 4 와 같은 의사결정나무-인공신경망 모형에 대해 가중치 분석을 진행하였다. 가중치 분석 결과를 통해 목표 변수 전류밀도는 가중치가 가장 높은 변수인 Thickness2 에 가장 크게 지배 받고 있으며, 그 외에 인자들에 대해서는 10% 내외로 가중치를 가지는 것으로 확인되었다. 따라서 Thickness2 인자의 조절을 통해 목표 값의 조정이

Table 4 Weight analysis from decision tree and BPN

Thickness 2	0.46
D parameter 1	0.16
Darkness	0.13
Thickness 1	0.10
Deformation 1	0.08
D parameter 2	0.07
Sum	1.00

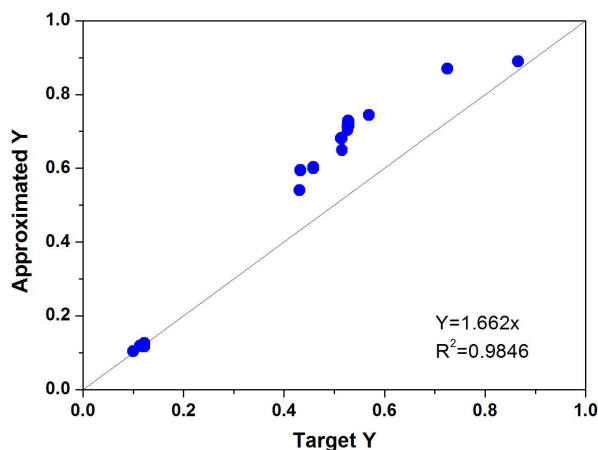


Fig. 4 Prediction of current density using decision tree and BPN

가능할 것으로 유추된다.

3.3 인공신경망 모델

다음으로는 초기 16 개의 설계인자들을 모두 입력변수로 받아들이는 인공신경망 모델을 구축하였으며 Table 5 와 같은 조건으로 수행되었다. 인공신경망을 구축하는데 380sec 가 소요되었으며, Y-RMSE 값은 0.0005163 이 나왔다. 의사결정나무-인공신경망 모델처럼 추론된 Y 값을 아래의 Fig. 5 과 같이 테스트 데이터 값과 검증해보았다. 이때 결정계수인 R-square 값은 0.9946 을 나타내고 기울기는 0.9025 를 나타내어 대체적으로 전구간에 걸쳐 매우 높은 추론능력을 보였다.

인공신경망을 단독으로 사용한 모델의 가중치해석을 통해 Table 6 과 같은 결과를 얻었다. 의사결정나무-인공신경망 모델과 동일하게 Thickness2 인자가 0.12 로 가장 높은 가중치 값을 나타내었으며, 두 번째로 높은 가중치를 나타낸 변수는 의사결정나무-인공신경망 모델과 다른 D parameter2 인자였다. 인공신경망만을 이용하여 핵심 설계인자를 도출한 경우, 의사결정나무-인공신경망 모델과 달리 16 개의 입력

Table 5 Elements of artificial neural network (BPN only)

Number of input nodes	16
Number of hidden layers	1
Number of hidden layer nodes	16
Number of output nodes	1
Number of training data	756 (90%)
Number of test data	84 (10%)
Learning rate	0.9
Gradient of sigmoid function	0.9
Convergence criteria	0.005

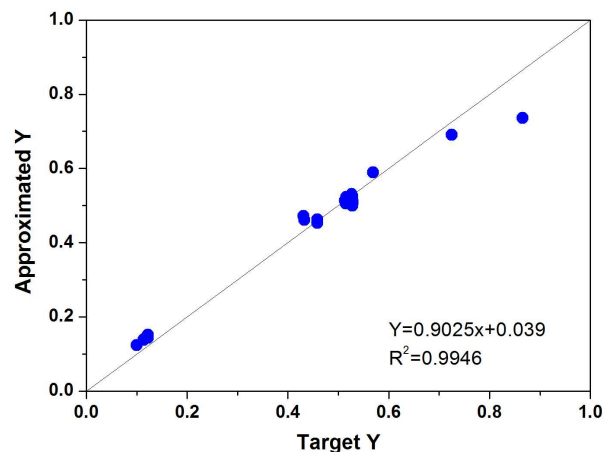


Fig. 5 Prediction of current density using BPN only

Table 6 Weight analysis from BPN only

Thickness 2	0.12
D parameter 2	0.10
P ratio	0.09
Thickness 1	0.09
Thickness 3	0.07
Hydro content 2	0.07
D parameter 1	0.06
Conductive agent	0.05
Darkness	0.05
Spring back	0.05
Binder	0.04
Range	0.04
Hydro Content 1	0.04
Attachment 1	0.04
Deformation 1	0.04
Attachment 2	0.04
Sum	1.00

변수 모두가 전체적으로 균일한 수준의 가중치 분포를 가지고 있었으며, 가장 큰 가중치 값을 가지는 Thickness2 설계 인자를 제외하고는 가중치 값의 순위 또한 다르게 나타났다. 본 연구에서 적용한 두 가지 방법에 의한 가중치 분석의 결과를 Table 4 와 Table 6 을 통해 비교하면 Table 4 의 가중치 중요도 순서가 Table 6 에서 일치하지 않는다. 이는 전류밀도를 구성하는데 사용된 16 개의 설계변수들이 서로 독립적이지 않고 상호연관성(Factor interaction)을 가지고 있는 원인으로 판단된다.

4. 결 론

상기 분석을 통해서 초기 기대하였던 의사결정나무-인공신경망 모델을 통한 효율성 증대효과보다는 은닉층 1 개로 비교적 짧은 시간에 낮은 수렴기준 값을 찾을 수 있는 모델을 해석하는 경우 유의한 설계인자를 일부 잃어버리게 되어 향후 인공신경망을 구축하는데 있어 낮은 신뢰성을 유발하는 결과를 가져오게 되는 것을 확인하였다. 리튬 이차전지의 설계와 같이 전기화학적 요소와 기계 등의 물리적인 요소가 혼합되어있는 복잡한 설계를 함에 있어서 하나의 설계목표 인자와 연관성을 갖는 다른 설계인자를 찾는 것은 매우 중요한 일이다. 설계 시스템을 단순화시키는 것은 실제 산업현장에서 중요한 설계 효율성을 증대시키는 효과를 가져올 수 있게 할 수

있다. 본 논문에서는 복합 모델의 성능이 인공신경망 단일모델보다 떨어지는 결과를 보였으나, 리튬 이차전지 극판 설계의 인자뿐 아니라 모든 설계인자를 포함하는 시스템에 대한 해석을 할 경우 복합모델이 가지는 시스템 단순화의 효과는 매우 클 것으로 생각된다. 또한 향후 인공신경망의 해석 결과와 유전알고리즘을 이용하여 상호교환(Trade-off) 관계에 있는 설계인자들간의 최적설계를 진행한다면 복잡한 시스템의 해석과 설계에 있어 매우 유용할 것으로 판단된다.

후 기

이 논문은 2011 년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 기초연구사업 지원을 받아 수행된 것임(2011-0024829).

참고문헌 (References)

- (1) <http://corrosion.kaist.ac.kr/battery.htm>
- (2) Park, Y. J., Jun, S., Kim, S. and Lee, D. H., 2010, "Design Optimization of a Loop Heat Pipe to Cool a Lithium Ion Battery Onboard a Mmilitary Aircraft," *J. of Mechanical Science and Technology*, Vol. 24, No. 2, pp.609~618.
- (3) Besenhard, J. O., 1999, "Handbook of Battery Materials," Wiley-VCH, Weinheim.
- (4) Peled, E., 1979, "The Electrochemical Behavior of Alkali and Alkaline Earth Metals in Nonaqueous Battery Systems? The Solid Electrolyte Interphase Model," *J. of Electrochemical Society*, Vol. 126, No. 12, pp. 2047~2051.
- (5) Yufit, V., Shearing, P., Hamilton, R. W., Lee, P. D., Wu, M. and Brandon, N. P., 2011, "Investigation of Lithium-Ion Polymer Battery Cell Failure Using X-ray Computed Tomography," *Electrochemistry Communications*, Vol. 13, No. 6, pp. 608~610.
- (6) Bae, H. S., Cho, D. H., Suk, K. H., Kim, B. S., Choi, K. R., Lee, J. U., No, S. W., Lee, S. C. and Son, Y. H., 2004, "Data Mining Using SAS Enterprise Miner," KyoWoo.
- (7) Lee, J., Jeong, H., Choi, D.-H., Volovoi, V. and Mavris, D., 2007, "An Enhancement of Constraint Feasibility in BPN Based Approximate Optimization," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, Vol. 196, Issues 17-20, pp. 2147~2160.
- (8) Lee, J. and Hajela, P., 1996, "Parallel Genetic Algorithm Implementation in Multidisciplinary Rotor Blade Design," *Journal of Aircraft*, Vol. 33, No. 5, pp. 962~969.
- (9) Cerrito, P. B., 2009, Introduction to Data Mining Using SAS Enterprise Miner, SAS Publishing.