

DOI: 10.13208/j.electrochem.190309

Cite this: *J. Electrochem.* 2020, 26(3): 370-388

Article ID:1006-3471(2020)03-0370-19

Http://electrochem.xmu.edu.cn

基于伪随机二进制序列的阻抗谱快速重构及其在电化学能源领域的应用

李伟恒^{1,2}, 黄秋安^{2*}, 杨维明³, 杨昌平¹, 张久俊^{2*}

(1. 湖北大学物理与电子科学学院, 湖北 武汉 430062; 2. 上海大学可持续能源研究院, 上海 200444;

3. 湖北大学计算机与信息工程学院, 湖北 武汉 430062)

摘要: 阻抗谱的应用范围越来越广, 其传统测试方法耗时长的的问题也日益突出. 提高阻抗谱测量速度的各种尝试中, 合成宽带激励信号和设计高效率估计算法被认为是最具潜力的解决方案, 由于伪随机二进制序列(pseudo-random binary sequence, PRBS)具有功率谱平坦和易生成等优点, 它在阻抗谱快速测试中具有独特优势. 本文综述了快速阻抗谱测试中三个核心问题: PRBS 信号类型、不同快速算法及其在电化学能源领域的典型应用. 对于 PRBS 信号类型, 即最大长度序列信号、混合 PRBS、离散区间二进制序列和正交 PRBS, 本文讨论了它们各自的特点和应用范围; 对于不同的 PRBS 激励信号的快速算法, 即离散傅里叶变换/快速傅里叶变换、小波变换、快速 m 序列变换、基于系统辨识的参数估计算法以及这些算法各自的特点和应用范围, 本文进行了深入的分析; 对于 PRBS 阻抗谱快速测量的应用, 本文以铅酸电池、锂离子电池、质子交换膜燃料电池和超级电容器等电化学能源为例, 验证了其应用的可行性. 为促进技术的进一步完善, 本文总结和分析了 PRBS 阻抗谱快速测量存在的挑战, 并提出了克服这些挑战所必需的未来研究方略.

关键词: 阻抗谱; 快速测量; 伪随机二进制序列; 估计算法; 电化学能源

中图分类号: O657.1; O646

文献标识码: A

电化学阻抗谱 (electrochemical impedance spectroscopy, EIS) 可以理解为系统的内部物理化学特性在电学上的体现, 定义为系统输出电压信号和输入电流信号的幅度之比和相位之差随频率在目标范围内的变化. 因此, 在特定条件下, 电化学阻抗谱可理解为目标频率范围内的系统传递函数. 阻抗谱对系统外部运行参数和内在属性参数具有敏感性, 阻抗谱诊断正是基于这一特性的典型应用, 其应用范围涵盖调控铅酸电池^[1-2]、锂离子电池^[3-6]、超级电容器^[7-8]、质子交换膜燃料电池^[9-12]、生物微流体^[13-16]、电力系统^[17-25]等众多领域. 上海大学可持续能源研究院张久俊团队在电化学阻抗谱建模及其诊断领域, 也做了一系列探索和总结. 2007 年, Zhang 等对应用于固体氧化物燃料电池和质子交换膜燃料电池中交流阻抗模型和方法进行了综述^[26-27]. 后续十余年, 该团队在阻抗建模及

诊断方面不断取得新的研究成果. 2009 年, Zhang 等撰写了质子交换膜燃料电池阻抗谱外文专著^[28]. 2012 年, Huang 等建立了统一的瞬态法拉第阻抗谱模型^[29]. 2016 年, Zhang 等完成了动力锂离子电池在不同荷电状态下的阻抗谱特性和诊断研究, 分析了锂离子电池极化特性随荷电状态演变规律^[30]. 2018 年, Zhang 等建立并验证了超级电容器多孔电极的多尺度阻抗模型^[31]. 最近, Zhang 等基于小波变换的优化重构规则, 实现了超快的 Warburg 类阻抗谱测量^[32].

传统的阻抗谱测试以正弦激励为基础, 采用频率响应技术 (frequency response analysis, FRA) 获取特定频率范围的阻抗谱数据, 基于 FRA 的电化学阻抗谱测试方法具有鲁棒性好、精度高等优点. 但是, 测试时间冗长, 仪器价格昂贵, 因此无法应用于实时诊断场景. 当前, 移动储能领域对快速阻

收稿日期: 2019-03-11, 修订时间: 2019-04-17 * 通讯作者, Tel: (86)18827068633; (86-21)66133250, E-mail: qian_huang@shu.edu.cn; jiujun.zhang@i.shu.edu.cn

国家自然科学基金项目 (No. 11674086) 资助

阻抗谱测试提出了越来越高的要求,例如,电动汽车行业中基于电池阻抗的诊断和检测技术,其需求迫切而且市场庞大^[5,33-34]。

为了实现阻抗谱的快速测试,从而满足实时诊断的应用需求,在过去二十多年中,已出现大量研究工作。对于阻抗谱快速测试,基于不同的需求和不同的应用背景,有不同的命名方式,如宽带阻抗测试、原位阻抗测试、在线阻抗测试、实时阻抗测试、快速阻抗测试等。尽管名称不同,但它们都有一个共同点,即使用宽频激励信号。对于阻抗谱的快速测试,为了方便叙述,本文统一命名为“快速阻抗谱测试”。提高阻抗谱的测试速度,一是合成新宽带激励信号,二是创新与激励信号匹配的快速算法。随着电子技术的快速发展,计算机或者嵌入式系统的计算能力快速提升,在优化阻抗谱的测试时间时,算法所耗时间成为越来越不重要的因素,而宽带激励信号自身所占时间越来越成为主导因素。

不同于以单频正弦信号作为激励的传统阻抗谱测试,快速阻抗谱测试使用宽频信号作为激励信号,如阶跃信号、方波信号、多正弦信号、chirp信号、伪随机二进制序列(pseudo-random binary sequence, PRBS)。由于宽频激励信号含有多个频率信息,一次激励即可实现多频阻抗谱测试,所以宽频激励信号可大幅度减少测试时间。在各种宽频信号中,伪随机二进制序列不仅易生成和易实现,而且其统计特性与带限白噪声相似,在一定频率范围内,其功率谱几乎呈现均匀分布,因此,伪随机二进制序列在快速阻抗谱测试中表现出良好的应用潜力。在不同应用背景领域,如铅酸电池、锂离子电池、超级电容器、质子交换膜燃料电池、生物微流体、电力系统等,均有基于伪随机二进制序列的快速阻抗谱测试研究报导,本综述对此进行了广泛深入的讨论。

1 快速阻抗谱测试的科学原理

对于快速阻抗谱测试系统,激励信号采用宽带信号 $x(t)$,时域响应信号为 $y(t)$ 。对激励信号和响应信号分别进行傅里叶变换,二者的比值即为特定频率的阻抗值或者导纳值。如果激励采用电流信号,则输出阻抗可表示为:

$$Z(j\omega) = V(j\omega)/I(j\omega) \quad (1)$$

其中, $V(j\omega)$ 和 $I(j\omega)$ 分别为输出电压响应 $y(t)$ 和激励电流信号 $x(t)$ 的傅里叶变换。

以锂电池为应用背景,举例说明快速阻抗谱测试基本流程。如图1所示,以常规电流阶跃 $i(t)$ 作为激励信号,对被测试系统(锂离子电池)进行阶跃激励,并记录其响应输出 $u(t)$,然后采用合适的算法,对激励信号和响应信号做运算处理,估计或者辨识被测试系统的阻抗谱 $Z(j\omega)$ 。

图1以电流阶跃信号为例介绍说明了快速阻抗谱测试基本原理,这一测试原理适用于采用不同激励信号和重构算法的快速阻抗谱测试方法。下面以激励信号为线索,举例说明不同的快速阻抗谱测试方法在电化学领域的应用。

1)阶跃信号。基于快速傅里叶变换(fast fourier transform, FFT), Park等使用阶跃电压信号作为激励信号获得了电化学系统在不同偏置电压下的阻抗谱^[35],随后这一方法又被用于获取电化学系统在充放电过程中的阻抗谱特性^[36]。

2)多脉冲信号。Itagaki等以双脉冲信号作为激励信号,小波变换作为重构算法,在84 s激励信号持续时长下,获得了0.1 Hz ~ 10 kHz频率范围的锂离子电池阻抗谱^[37]。

3)多正弦信号。Beer等以多正弦信号作为激励信号,离散傅里叶变换作为重构算法,测试并获得了燃料电池的电化学阻抗谱^[38]。

4)Chirp信号。Slepski等使用Chirp信号和短时傅里叶变换(short time fourier transform)实现了快速阻抗谱测试^[39]。

5)伪随机二进制序列。Debenjak等以伪随机二进制序列作为激励信号,小波变换作为重构算法对质子交换膜燃料电池进行快速阻抗谱测试,在60 s测试时长下获取了0.1 Hz ~ 500 Hz的阻抗信息^[40]。

不同快速阻抗谱测试方法其特点也不同,基于伪随机二进制序列的快速阻抗谱测试方法,其PRBS信号易生成,信号时域取值离散化更易进行后期采样处理,信号的频谱特性更为接近白噪声,而且具有一定的可控性。

2 快速阻抗谱测试中伪随机二进制序列信号

下面,将对快速阻抗谱测试中伪随机二进制序列信号进行综述和评价。其中,伪随机二进制序列包括常用的最大长度序列(maximal length binary sequence, MLBS/Maximal length sequence, MLS)、混合伪随机二进制序列、离散区间二进制序列(discrete-interval binary sequence, DIBS)和正交伪随机二进制序列(orthogonal pseudo-random

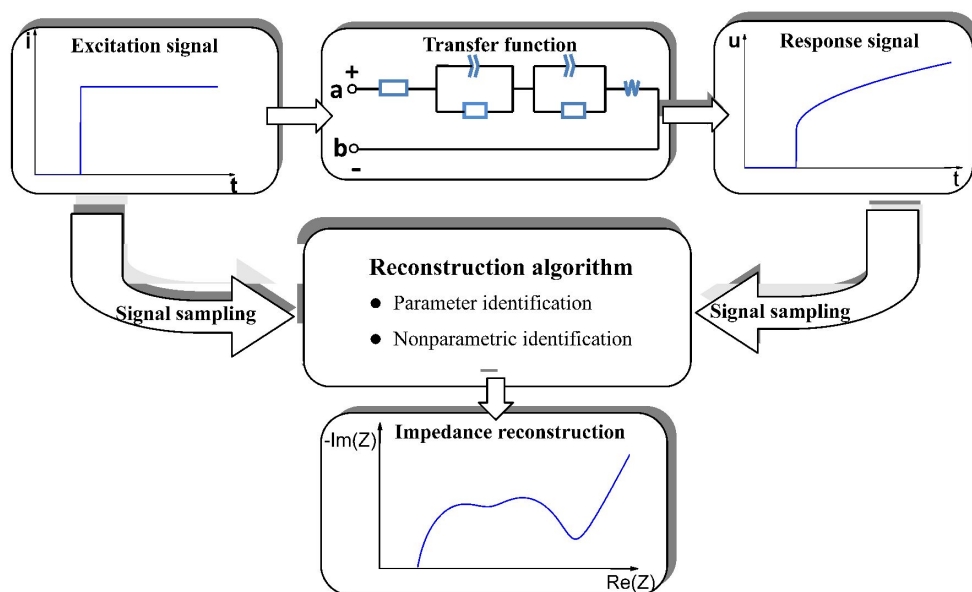


图1 阻抗谱快速重构示意图. 以锂离子电池为测试对象, 以电流阶跃 $i(t)$ 作为激励信号, 记录其电压响应输出 $u(t)$, 最后采用相应算法重构阻抗谱 $Z(j\omega)$

Fig. 1 Flowchart for fast reconstruction of impedance spectrum. A step current $i(t)$ is applied to the lithium ion battery and an output response voltage $u(t)$ is recorded. Estimation algorithm is used to reconstruct impedance spectrum $Z(j\omega)$

binary sequences, OPRBS)等.

2.1 典型伪随机二进制序列

伪随机二进制序列(PRBS)只包含 0 和 1 两种状态. PRBS 可以预先确定, 并且可以周期性产生, 同时, 具有随机特性 (即统计特性). 简而言之, PRBS 不仅为确定性周期信号, 而且表现出与白噪声序列相同的统计特性, 当生成策略未知时, PRBS 看起来就像真随机信号. 因而, PRBS 在通信、雷达等领域内有广泛应用, 其基本性质如下^[40]:

1) 时钟周期 T_{bit} 不仅控制状态切换, 而且决定时钟频率 F_{bit} :

$$F_{\text{bit}} = 1/T_{\text{bit}} \quad (2)$$

2) 如果序列长度为 N , 则序列的周期 T 为:

$$T = NT_{\text{bit}} \quad (3)$$

3) 频谱分量与频率成反比, 其中 $2a$ 为峰间幅值, $A(k)$ 为伪随机二进制序列的傅里叶系数幅值.

$$A(0) = \frac{a}{N} \quad (4-1)$$

$$A(k) = a \frac{\sqrt{N+1}}{N} \text{sinc}(k\pi/N) \quad (4-2)$$

$$\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x} \quad (4-3)$$

4) 峰值因数较低. 较低的峰值因数对应着较为平坦的功率谱, 且随着带宽的增大, 其峰值因数逐

渐减小, 在带宽趋于无穷时减小为 1.

5) 噪声具有较好均匀分布. 伪随机二进制序列信号的时间因子通常为 1.5, 表明其对于噪声也具有较好的均匀分布.

最大长度序列是最常用的伪随机二进制序列, 可借助多级反馈移位寄存器实现^[41], 移位寄存器的阶数 n 与最大长度序列长度 N 之间的数量关系为:

$$N = 2^n - 1 \quad (5)$$

由式(3)可知, 最大长度序列的最大周期为:

$$T_{\text{max}} = (2^n - 1)T_{\text{bit}} \quad (6)$$

由 n 级反馈移位寄存器生成的最大长度序列信号遵循线性递归原则^[42]:

$$a_n = (\sum_{i=1}^n c_i a_i) \bmod(2) \quad (7)$$

如图 2(A)所示, 每个新生成的元素 a_n 都由所有寄存器和反馈系数所决定, 反馈系数 c_i 与本原多项式对应如下:

$$f(x) = 1 + \sum_{i=1}^n c_i x^i \quad (8)$$

不同的移位寄存器初始值所得到的最大长度序列信号不同. 最大长度序列信号多为关于 0 对称的双极序列, 存在 +1 和 -1 两种幅值状态, 如图 2(B)所示. 阶数 n 的大小影响最大长度序列的幅值

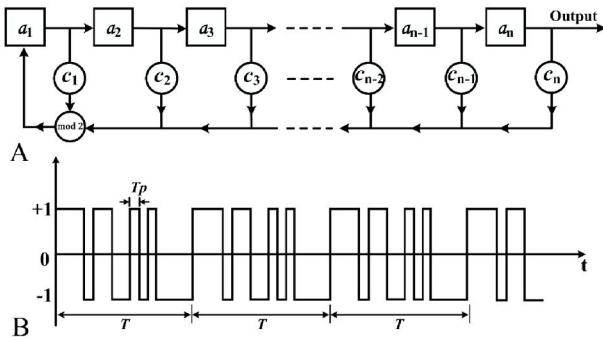


图2 (A) 生成最大长度序列反馈移位寄存器结构示意图;
(B) 双极性最大长度序列时域波形图^[42]

Fig. 2 (A) A schematic of the feedback shift register used to generate the maximum length sequence (MLS); (B) Time domain waveform of bipolar MLS^[42]

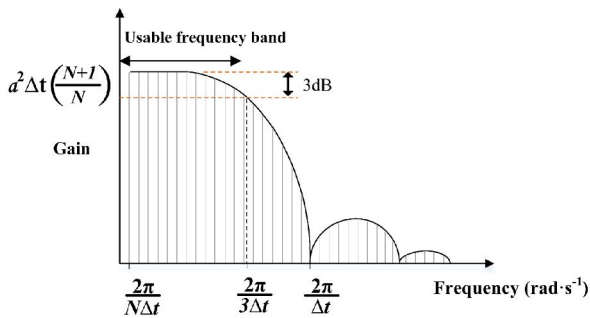


图3 伪随机二进制序列信号功率谱示意图^[2]

Fig. 3 Power spectrum diagram of PRBS^[2]

谱,当阶数 n 增大时,序列长度 N 也增大,各频率分量的幅值谱强度随之下降。

最大长度序列周期最长,且其相关长度最短,该特点意味着其功率谱尽可能趋向均匀^[40]。图3为伪随机二进制序列在特定频率范围内的功率谱示意图,在可用频率范围内,功率谱近似均匀。在低频部分,最大长度序列信号功率谱的幅值几乎保持均匀,当频率 $f=1/(3T_{\text{bit}})$ 时,幅度下降 3 dB;当频率进一步增大时,其幅值加速衰减;当频率 $f=1/T_{\text{bit}}$ 时,其幅度衰减为零。在剩余频率范围,幅值随频率的增加,呈现先增大后减小的规律,并周期重现,且整体强度逐渐衰减,并在倍频频率处幅值为 0。

当频率 $f > 1/(3T_{\text{bit}})$ 时,信号幅值谱的强度较小,无法满足测量精度的需求,因此,通常不关注此段频率范围。由此可见,可用频率带宽由时钟周期 T_{bit} 所制约^[43],PRBS 最低频率为:

$$f_L = 1/(NT_{\text{bit}}) \quad (9)$$

PRBS 最高频率为:

$$f_H = 1/(3T_{\text{bit}}) \quad (10)$$

如果对于测试精度要求严格,时钟频率理论取值应严格遵循式(10)^[20]。工程实践最关注测试精度是否处于较为合理区间,此时,最高频率 f_{max} 与时钟频率 F_{bit} 关系满足如下要求即可^[40]:

$$F_{\text{bit}} = 2.5f_{\text{max}} \quad (11)$$

或者表示为:

$$F_{\text{max}} = 0.4F_{\text{bit}} \quad (12)$$

最大长度序列是确定性的周期性信号,可通过增加周期数来削弱噪声干扰。与脉冲类信号相比,最大长度序列激励幅值强度更低。当被测系统对扰动幅度较为敏感时,比如锂离子电池和燃料电池,激励信号幅度越小,测试精度越高。对于这些特殊应用场景,可以更好地发挥出伪随机二进制序列的特色和优势。

2.2 混合伪随机二进制序列

由上述讨论可知,伪随机二进制序列的有效带宽由式(9)和式(10)共同决定,带宽范围依赖序列长度 N 和时钟周期 T_{bit} 。在基于典型伪随机二进制序列的快速阻抗谱测试中,只能通过改变序列长度 N 和时钟周期 T_{bit} 的大小来实现带宽范围的调整。增大时钟周期 T_{bit} 可降低下限最低频率,但是同时导致上限最高频率的减小,反之亦然。因而,典型伪随机二进制序列的带宽,不能通过时钟周期 T_{bit} 的变化实现有效扩展,只能通过增加序列长度 N 来有效扩展。然而,当增加序列长度 N 时,必然同时导致计算负荷的增加。

基于上述困境,Manganiello 等使用两个不同的伪随机二进制序列来扩展频带宽度^[10],下面以该文献所研究的带宽范围 $10^{-2} \text{ Hz} \sim 10^4 \text{ Hz}$ 为例来说明。当采用单个最大长度序列信号时,由式(5)、(9)和(10)可得:

$$f_{L1} = F_{\text{bit}}/(2^n - 1) = 0.01 \text{ Hz} \quad (13-1)$$

$$f_{H1} = F_{\text{bit}}/3 = 10 \text{ kHz} \quad (13-2)$$

其中, f_{L1} 和 f_{H1} 分别为测试带宽的最低和最高频率。由式(13)可得,时钟频率 $F_{\text{bit}} = 30 \text{ kHz}$,阶数 $n = 22$ 。信号总时长为:

$$t_{\text{total}} = (2^n - 1)/F_{\text{bit}} \approx 140 \text{ s} \quad (14)$$

此时,信号序列长度 $N = 2^n - 1 = 4194303$,这对于低成本的嵌入系统而言,计算负担过于沉重。

采用两个连续且不同的伪随机二进制序列,分别完成不同频段的阻抗谱测试,此办法可大幅度降低信号持续时长。两个不同序列分辨率的选

取,必须兼顾数据长度和测试精度的要求,而且两者的有效频带叠加后应完全覆盖目标频带宽度.现有伪随机二进制序列 A 和 B,其中“A”为低阶数序列,“B”为高阶数序列,由式(9)和式(10)可知,低阶数序列“A”决定两序列叠加后有效频段的最高频率,高阶数序列“B”决定两序列叠加后有效频段的最低频率.在本例中,序列“A”阶数 $n_A=10$,序列“B”阶数 $n_B=16$.

序列“A”和“B”的时钟频率选择如下:

$$F_{rA} = 3f_{HI} = 30 \text{ kHz} \quad (15)$$

$$F_{rB} = (2^{n_B} - 1)f_{LI} \quad (16)$$

由式(13)、(15)和(16)可知,上述序列的有效频带分别为:

序列“A”: $29 \text{ Hz} \sim 10^4 \text{ Hz}$

序列“B”: $10^{-2} \text{ Hz} \sim 218 \text{ Hz}$

上述序列的持续时长分别为:

$$\text{序列“A”}: t_A = \frac{2^{n_A} - 1}{F_{rA}} = 0.0341$$

$$\text{序列“B”}: t_B = \frac{2^{n_B} - 1}{F_{rB}} = 100$$

信号持续总时长为: $t_L = t_A + t_B \approx 100 \text{ s}$. 可见,当采用两个不同的伪随机二进制序列时,相比于单一最大长度序列,序列时长和序列长度都显著缩短.

序列个数可以根据不同测试需求调整,例如,Weddle 等使用了 5 个伪随机二进制序列信号测试锂离子电池阻抗谱^[3]. 值得注意的是,序列个数的增加并不一定会加快测试速度. 因为阶数 n 取整数,所以多序列的有效频率范围存在部分重叠,如上例中,序列“A”的最低频率为 29 Hz ,序列“B”的最高频率为 218 Hz . 同时,各序列的持续时间必须遵循最低频率所对应时间常数. 因此,序列个数的

盲目增加可能导致输入信号持续时间的增大,反而增加了测试时间^[10]. 另外,在某些特定应用场景,设计序列持续时间时,需要考虑系统达到稳定状态所需时间,这会进一步增加测试时间^[44].

面对上述困境,Davidson 等采用了混合最大长度序列信号,将两个不同最大长度序列合成新的激励信号^[44]. 上述两个不同序列的时钟频率选择,应遵循如下原则:低时钟频率序列的上限频率应与高时钟频率序列的下限频率相同. 下面,仍然以上文定义的序列“A”和“B”为例说明,序列“A”为高时钟频率,序列“B”为低时钟频率,它们频率分辨率应满足^[44]:

$$F_{rA} = (N_A/2.3)F_{rB} \quad (17)$$

其中, N_A 为序列“A”的序列长度. 因阶数必须取整数,对时钟频率的选取存在限制,因而式(17)的计算结果需要下舍入,与低频分辨率序列进行契合. 例如,如果选取序列“A”的时钟频率为 1 Hz ,阶数为 4,则其对应序列“B”的时钟频率应为 6 Hz . 随后通过“和运算”,将两组不同有效频率范围的伪随机二进制序列混合生成新的伪随机二进制序列,新的伪随机二进制序列同时有着两组伪随机二进制序列的特性,两个原伪随机二进制序列“A”“B”与混合生成的新伪随机二进制序列如图 4 所示.

2.3 离散区间二进制序列

离散区间二进制序列也是周期性二进制序列,同样具有一般伪随机二进制序列的特点,该信号可用迭代算法生成^[45]. 不同于最大长度序列,离散区间二进制序列能量可更集中于某一频带^[40]. 通过对离散区间二进制序列进行优化设置,在不增加时域信号幅值的条件下,与常规最大长度序列信号相比,目标频率点处的能量可以增大 $4 \sim 8$ 倍^[25],其波峰因数通常在 $1.1 \sim 1.2$ 之间^[15]. 理想离散区间二进制序列基本性质如下^[40]:

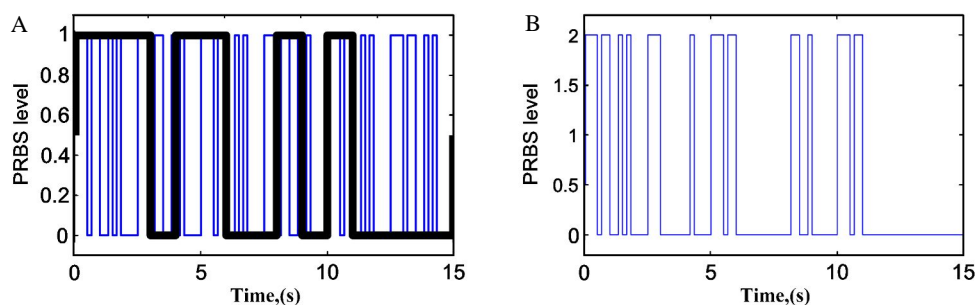


图 4 (A)原伪随机二进制序列;(B)混合生成的伪随机二进制序列^[44]

Fig. 4 The original (A) and the mixed (B) PRBS signals^[44]

- 1) 具有任意周期 T_0 , 且无泄漏;
- 2) 频率分辨率为 $f_0 = 1/T_0$;
- 3) 能量集中于用户所选择的倍频点 kf_0 处.

在常用激励信号中, 多频正弦信号同样具有可增大目标频率点处能量这一特性. 与常规的二进制序列比较, 多频正弦信号具有如下特点: 频谱能量相对集中, 理论设计简便, 实际合成工艺复杂, 时域取值变化复杂, 离散化处理复杂, 较大的幅值易导致系统进入非线性区. 图 5 为常规最大长度序列、离散区间二进制序列和多频正弦信号时域波形图, 其中最大长度序列的长度为 1023, 离散区间二进制序列的长度为 1024, 二者幅值相同. 经过优化后, 离散区间二进制序列中 18 个目标谐波频率点具有最高的频谱能量. 多频正弦信号由单频正弦信号合成, 这些单正弦信号拥有与对应离散区间二进制序列相同的目标谐波频率和幅度信息, 并对多频正弦信号相位进行优化, 使信号的

峰峰值最小化. 为了确保三者具有近似的频率分辨率, 三个信号采样速率均为 35 kHz.

最大长度序列、离散区间二进制序列和多频正弦信号的频谱图如图 6 所示, 图中显示了 18 个目标频率点处的能量信息. 对于任一给定目标频率点处的能量, 离散区间二进制序列是最大长度序列的 4~6 倍; 多频正弦信号与离散区间二进制序列信号相比, 前者信号能量更大, 但前者时域取值不易离散化.

2.4 正交伪随机二进制序列

为了解决多输入多输出系统的辨识问题, 1966 年 Briggs 和 Godfrey 提出正交伪随机二进制序列^[46]. 系统频域辨识的实质就是估计黑匣子系统的频域传递函数, 首先激励扰动系统, 同时记录响应信号, 基于激励和响应的记录数据, 最后估计辨识输入输出关系^[40]. 这与阻抗测试原理相同, 因而对于快速阻抗测试具有很大参考价值. 对多输入

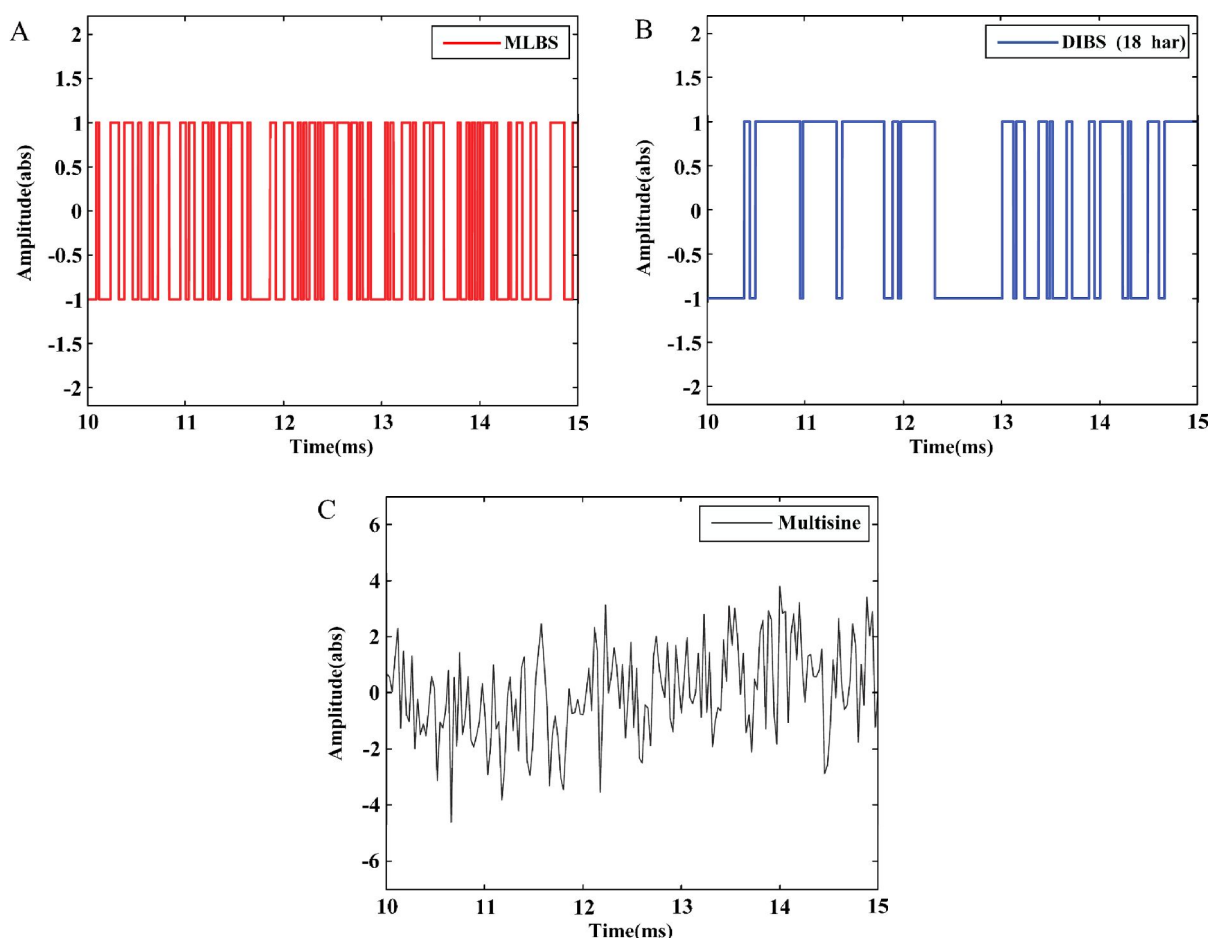


图 5 三种信号波形图比较:(A)最大长度序列;(B)离散区间二进制序列;(C)多频正弦信号^[25]

Fig. 5 Comparasion of waveform in time domain for three kinds of signals. (A) MLBS; (B) DIBS; (C) Multisine^[25]

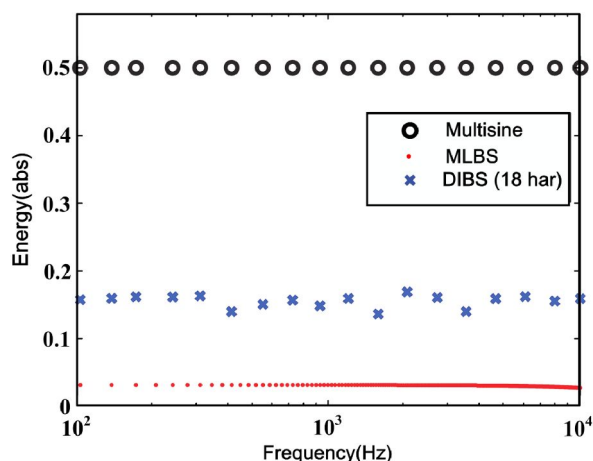


图 6 多频正弦信号、最大长度序列和离散区间二进制序列三个信号的频谱对比^[25]

Fig. 6 Spectrum comparison among multisine, MLBS and DIBS^[25]

多输出系统进行系统识别时, 首先应当保证各信道的输入信号不相关. 通常情况下, 如果以典型伪随机二进制序列作为激励输入信号, 那么应对各个伪随机二进制序列进行时移调整, 且设定不同的时移间隔^[47-49]. 虽然时移方法易实现, 但在系统辨识中, 各激励信号的时长应不低于系统趋于稳定所需时间. 当多输入多输出系统不同信道趋于稳定所需时间差异较大时, 这会导致输入信号总体持续时间过长, 降低测试速度^[50].

正交伪随机二进制序列由一组正交序列所组成, 该信号不仅满足各信道信号不相关的条件, 而且还克服了时移间隔所导致的测试时间过长的缺点, 其具体合成方法见文献^[50-53]. 下面以 Godfrey 等

所用的正交伪随机二进制序列为例, 说明该信号的生成步骤^[54]:

- 1) 生成一组伪随机二进制序列作为第一组序列;
- 2) 将序列 01010101... 与第一组序列进行模 2 加法运算生成第二组序列;
- 3) 将序列 001100110011... 与第一组序列进行模 2 加法运算生成第三组序列;
- 4) 将序列 0000111100001111... 与第一组序列进行模 2 加法运算生成第四组序列.....

依据上述信号的产生原理, 得到如图 7(A) 所示正交伪随机二进制序列的时域波形图, 以 10 kHz 速率生成, 信号长度为 63 位, 图 7(B) 为时域信号对应的谱能量图, 从图中可以看出两组正交序列不存在相同频率的谐波. 除了上述特征, 正交伪随机二进制序列可以抑制系统的非线性效应^[54], 该序列在三相系统稳定性评估和电力电子系统的母线阻抗监测中得到了应用^[17,55-56].

2.5 其他类型伪随机二进制序列

除了上述讨论, 伪随机二进制序列还有其他类型可应用于快速阻抗谱测试, 如 Ritzberger 等采用变幅值伪随机二进制序列 (amplitude-modulated pseudo randombinary sequency) 作为激励信号, 实现了燃料电池阻抗谱的在线估计^[9]. 与常规伪随机二进制序列相比, 变幅值伪随机二进制序列具有更强的检测响应信号非线性的能力.

3 基于 PRBS 信号的快速阻抗谱测试估计算法

下面, 将对快速阻抗谱测试中伪随机二进制

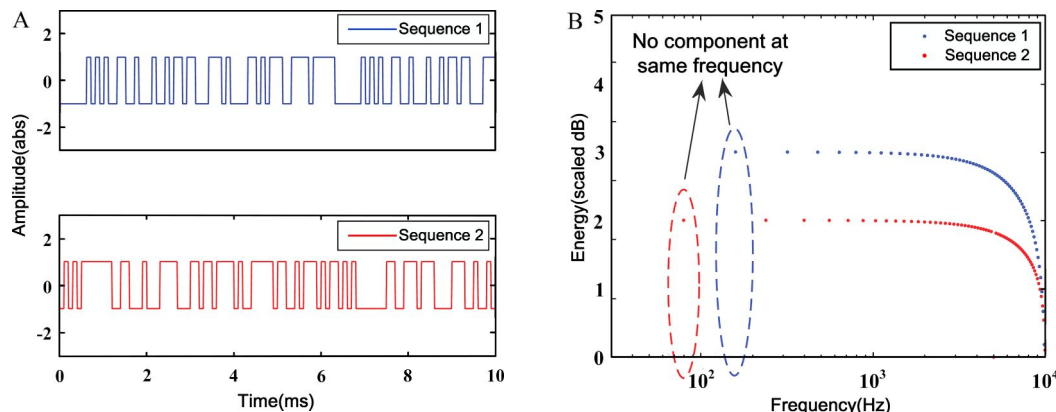


图 7 正交伪随机二进制序列组(A)时域信号图;(B)谱能量图^[55]

Fig. 7 (A) Two orthogonal sequences in the time domain. (B) Spectral energies of two orthogonal sequences^[55]

序列的相应算法进行综述和评价. 快速阻抗谱测试的算法可以分为两大类, 一类为需要基于相应模型和先验知识的参数估计法(parameter identification), 比如, 基于参数估计的最小二乘法属于参数识别法, 需要先验知识确定数学模型结构, 并识别模型参数; 另一类为不需要任何模型和先验知识的非参数辨识法(nonparametric identification), 比如采用离散傅里叶变换和小波变换直接对输入输出信号做傅里叶分析, 通过电压电流信号傅立叶变换的比值确定阻抗谱. 快速 m 序列变换, 通过输入输出信号相关函数的关系确定测试系统的阻抗谱, 它们均属于非参数识别法.

3.1 离散傅里叶变换

为了实施离散傅里叶变换 (discrete fourier transform, DFT), 首先对连续信号离散化:

$$x(nT_s) = x(t)\delta(t-nT_s) \quad (18)$$

其中, $n=0,1,2,3,\dots,N-1$, T_s 为采样间隔, δ 为狄拉克函数, n 为整数. 对序列 $x(nT_s)$ 进行离散傅里叶变换:

$$\tilde{X}_{\text{DFT}}(e^{-j2\pi k/N}) = \sum_{n=0}^{N-1} x(nT_s)e^{-j2\pi nk/N} \quad (19)$$

其中, $k=0,1,2,\dots,N-1$. 对激励电流信号 $i(t)$ 和响应电压信号 $u(t)$ 分别进行离散傅里叶变换, 可得被测系统复阻抗:

$$Z_{\text{DFT}}(e^{-j2\pi k/N}) = \frac{\tilde{U}_{\text{DFT}}(e^{-j2\pi k/N})}{\tilde{I}_{\text{DFT}}(e^{-j2\pi k/N})} \quad (20)$$

其中, $2\pi k/N$ 为归一化频率.

DFT 作为典型频谱分析工具, 在快速阻抗谱测试中被广泛应用^[10,19,56].

3.2 小波变换

作为典型频率分析工具, 离散傅里叶变换获取

被处理信号的平均频谱特性, 而无法对某一时刻点的频谱特性进行分析, 时间点信息因此被丢失. 上述缺点, 短时傅里叶变换(short-time fourier transform, STFT) 可以克服. STFT 通过对时域信号进行加窗分割来记录信号的时间点信息, 并可获得对应时刻点的频域特征. 但是, STFT 运用固定窗函数, 其时间分辨率和频率分辨率也随之固定, 原信号在高频和低频区间的精度必然无法同时兼顾.

小波变换(wavelet transform, WT) 不仅像常规 FT, 可以获取被分析信号的频域信息, 而且还像 STFT 一样, 可以捕获特定时刻点所对应的频率, 更进一步, WT 中尺度因子的存在, 增加了时频分辨的灵活性. 傅里叶变换 FT、短时傅里叶变换 STFT 和小波变换 WT 三者时域/频域分辨精度的彼此制约关系示意图如图 8 所示. 图 8 说明, 小波变换不仅可以记录时域信息, 而且时频分辨率还可以动态调整; 在低频部分, 频率分辨率高, 时间分辨率低; 在高频部分, 频率分辨率低, 时间分辨率高^[57]. 下面, 对 WT 进行一个简要说明. 对原始信号 $x(t)$ 进行小波变换:

$$X_w(a,b) = \frac{1}{\sqrt{b}} \int_{-\infty}^{+\infty} x(t)\psi^*\left(\frac{t-a}{b}\right)dt \quad (21)$$

其中 $\psi^*(t)$ 为母小波函数复共轭, a 为记录时间信息的时移因子, b 为与频率信息直接相关的尺度因子. 通过对母小波函数 $\psi(t)$ 进行时移操作(由参数 a 所控制)和伸缩变换(由参数 b 所控制), 进而实现灵活的时频分辨率. 例如 Debenjak 等以伪随机二进制序列作为激励信号, 使用 Morlet 小波变换算法, 计算得到 0.1 Hz ~ 500 Hz 频带范围的燃料电池阻抗谱^[11]. 为缩短阻抗谱测试时间, Debenjak 等采用两组 PRBS 信号依次输入测试系统完成阻抗

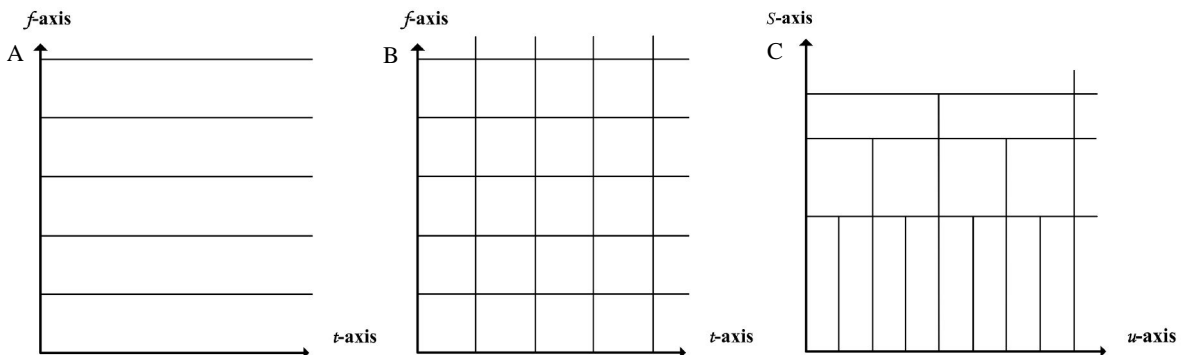


图 8 各变换算法中时域/频域分辨精度彼此制约关系示意图. (A)傅里叶变换; (B)短时傅里叶变换; (C)小波变换^[57]

Fig. 8 Different time-frequency tile allocations of the three transforms: (A) Fourier transform, (B) STFT and (C) wavelet transform^[57]

测试, 第一组 PRBS 信号时钟频率 $f_s = 500$ Hz, 适用于 0.1 Hz ~ 10 Hz, 持续 45 s. 第二组 PRBS 信号, 时钟频率 $f_s = 500$ Hz, 适用于 10 Hz ~ 500 Hz, 持续 15 s. 频率选取与适用范围与本文 2.1 节所叙述信号性质相符. 同时, 为了兼顾频率分辨率和阻抗计算的可靠性, Morlet 小波变换算法中小波中心频率参数 ω_0 要随频率范围做出适时调整: 0.1 Hz ~ 1 Hz, $\omega_0 = 2\pi \text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$; 1 Hz ~ 10 Hz, $\omega_0 = 20\pi \text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$; 10 Hz ~ 500 Hz, $\omega_0 = 100\pi \text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$. 最终耗时 60 s 实现了 0.1 Hz ~ 500 Hz 频带范围阻抗谱测试, 与单正弦传统测试方式相比, 速度提高了近 5 倍.

此处, 以 Morlet 小波为例, 简要说明尺度参数对时频分辨率的影响. 常规 Morlet 小波为:

$$\psi(t) = \frac{1}{\sqrt[4]{\pi}} \left(e^{j\omega_0 t} - e^{-\frac{\omega_0^2}{2}} \right) e^{-\frac{t^2}{2}} \quad (22)$$

其中 ω_0 为母小波中心频率, 当 ω_0 满足 $\omega_0 > 5$ 的条件时, $\exp(-\omega_0^2/2)$ 可被忽略, 式(22)简化为:

$$\psi(t) = \frac{1}{\sqrt[4]{\pi}} e^{j\omega_0 t} e^{-\frac{t^2}{2}} \quad (23)$$

将式(23)代入式(21)可得:

$$X_w(a, b) = \int_{-\infty}^{+\infty} x(t)h(t)w(t)dt \quad (24)$$

上式中, $h(t)$ 和 $w(t)$ 定义为:

$$h(t) = e^{-j\omega_0 \frac{t-a}{b}} \quad (25-1)$$

$$w(t) = \frac{1}{\sqrt[4]{\pi} \sqrt{b}} e^{-\frac{(t-a)^2}{2b^2}} \quad (25-2)$$

$h(t)$ 为复正弦函数, $w(t)$ 为高斯窗函数, 参数 a 可记录时刻信息, 参数 b 与频率成反比. 最近, 日本学者 Hoshi 等用脉冲信号作为激励信号, 并运用复 Morlet 小波变换算法, 对锂离子电池实现了快速阻抗谱测试^[58].

尽管小波变换具有灵活时频分辨率的特点, 但是与离散傅里叶变换相比, 其计算负荷明显更大. 对于低成本嵌入式应用场景, 离散傅里叶变换更具竞争力^[10].

3.3 快速 m 序列变换(FMT)

当激励信号为最大长度序列时, 借助快速 m 序列变换算法, 可以求解得到线性系统的冲击响应^[59-60], 对冲击响应做快速傅里叶变换, 可以进一步得到系统的传递函数, 即实现了快速阻抗谱测试^[61]. 由信号与系统理论可知, 对输入 MLBS 信号的自相关函数和系统的脉冲响应函数进行卷积可得到

系统的互相关函数:

$$R_{xy}(k) = R_{xx}(k) * h(k) \quad (26)$$

其中, $R_{xy}(k)$ 为互相关函数, $R_{xx}(k)$ 为输入信号的自相关函数, $h(k)$ 为脉冲响应函数. 对于 MLBS 信号, 其自相关函数如式(27)所示^[62]:

$$R_{xx}(k) = \delta(k) - \frac{1}{L+1} \quad (27)$$

其自相关函数由狄拉克 δ 函数和直流分量两部分组成. 在实际应用中, MLBS 系统为交流耦合的, 直流分量可以忽略. 忽略直流分量, 由式(26)和式(27)可得:

$$R_{xy}(k) = \delta(k) * h(k) = h(k) \quad (28)$$

由式(28)可知, 脉冲响应可由输入 MLBS 信号与输出响应信号的互相关函数获得. 归一化的互相关函数定义如下:

$$R_{xy}(k) = \frac{1}{N+1} \sum_{i=0}^{L-1} x(i)y(k+i) \quad (29)$$

对式(29)进行调整:

$$R_{xy}(k) = \frac{1}{N+1} \sum_{i=0}^{L-1} x(i-k)y(i) \quad (30)$$

将式(30)改写为矩阵形式, 使用冲击响应函数替换互相关函数, 可得系统冲击响应 H 与输出响应 Y 对应关系为^[60]:

$$H = \frac{1}{N+1} M Y \quad (31)$$

其中, H 为冲击响应 $h(k)$ 的矩阵形式, M 为 $x(i-k)$ 的矩阵形式, Y 为输出响应 $y(i)$ 的矩阵形式. 式(31)中, 矩阵 M 可表示为^[63]:

$$M_{ij} = m_{j-i \bmod(N)} \quad i, j = 0, 1, \dots, N-1 \quad (32)$$

其中, M_{ij} 表示为第 i 行第 j 列的元素, 即 M 矩阵第一列为特征 m 序列, 剩余列由此序列循环右移得到, M 矩阵的构建过程可以描述如下^[64]:

$$A = \begin{bmatrix} -1 \\ -1 \\ -1 \\ +1 \\ -1 \\ +1 \\ +1 \end{bmatrix}^T \rightarrow M = \begin{bmatrix} -1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 & +1 \\ +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 \\ +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 \\ -1 & +1 & +1 & -1 & -1 & -1 & +1 \\ +1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 & -1 \\ -1 & +1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 \\ -1 & -1 & +1 & -1 & +1 & +1 & -1 \end{bmatrix}$$

其中, A 为 3 阶 MLBS 信号单周期输出信号, 作为矩阵的第一行, 其余行由 A 序列循环右移得到.

由式(31)可以实现对系统冲击响应的求解, 但当阶数 n 增大时会使得计算量呈指数递增. 为了减轻运算负荷, 可以引入快速哈达码变换^[59,65] (fast hadamard

transform, FHT), 从而实现快速 m 序列变换. 与快速傅里叶变换类似, 快速哈达码变换是一种用于西尔维斯特类型(Sylvester-type)哈达码(Hadamard)矩阵运算的高效算法. 哈达码矩阵为 n 阶方阵, $n=1, 2, 4, 8, \dots, 2m$ 的倍数^[66]. 矩阵元素均为 ± 1 , 且 M 矩阵与哈达码矩阵具有等价性^[67-68]. 因而, 将 M 矩阵等价转化为哈达码矩阵即可使用快速哈达码变换加快计算速度. 以 Chu W T 的工作^[64]为例对两矩阵的转化进行说明. 设三阶 MLBS 信号所对应的 M 矩阵如下:

$$M = \begin{bmatrix} -1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 & +1 \\ +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & -1 \\ -1 & +1 & +1 & -1 & -1 & -1 & +1 \\ +1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 & -1 \\ -1 & +1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 \\ -1 & -1 & +1 & -1 & +1 & +1 & -1 \end{bmatrix}.$$

使用二进制表示法, 即以 0, 1 替代“+1”, “-1”, $M(n \times n)$ 矩阵可以分解为矩阵 $R(n \times m)$ 和矩阵 $C(m \times n)$ 的形式:

$$M = RC \quad (33)$$

其中, C 矩阵由 M 矩阵的前 m 行构成, R 矩阵元素可通过选取 M 矩阵的适当列来实现^[59], 如图 9 所示. 为了方便后续说明, 以 R 矩阵与 C 矩阵旁的浅色数

$$M = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 1 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 4 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 2 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 \\ 6 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 3 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 \\ 7 & 4 & 6 & 7 & 3 & 5 & 2 & 1 \\ 5 & & & & & & & \end{bmatrix}$$

[R] [C]

图 9 将使用二进制法表示的 M 序列矩阵进行因式分解^[64]

Fig. 9 Factorization of the m -sequence matrix. Beside each factored matrix are the corresponding ‘tags’ for each row or column^[64]

字标记了各行或各列所对应的二进制数值大小.

8 阶西尔维斯特类型的哈达码矩阵有如下形式:

$$H_A = \begin{bmatrix} +1 & +1 & +1 & +1 & +1 & +1 & +1 & +1 \\ +1 & -1 & +1 & -1 & +1 & -1 & +1 & -1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 \\ +1 & +1 & +1 & +1 & -1 & -1 & -1 & -1 \\ +1 & -1 & +1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 & -1 & -1 & +1 & +1 \\ +1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 & +1 & -1 \end{bmatrix}$$

其构造方法可参见 Harwit 和 Sloane 的工作^[69]. 与 M 矩阵类似, 西尔维斯特类型的哈达码矩阵($L \times L$)同样可以分解为两矩阵: B 矩阵($L \times m$)和 B^T 矩阵, 其中 B^T 为 B 的转置.

$$H_A = BB^T \quad (34)$$

B 矩阵第 i 行为 m 位的二进制数值表示的整数 i , 如图 10 所示.

由图 9 和图 10 的分解结果中用浅色数字标记的二进制数值大小可知, 除却 B 或 B^T 矩阵中所含有的第一行或第一列零元素外, B 和 R 矩阵、 B^T 和 C 矩阵具有相同的元素. 因而通过适当的置换矩阵即可实现 B 和 R 矩阵、 B^T 和 C 矩阵间的转换. 如下:

$$R = P_L B \quad (35-1)$$

$$C = B^T P_S \quad (35-2)$$

由式(33)~(35)可得, M 矩阵与西尔维斯特类型的哈达码矩阵等价关系如下:

$$M = P_L H_A P_S \quad (36)$$

式(36)中, H_A 为西尔维斯特类型(Sylvester-type)的哈达码(Hadamard)矩阵, 其维度为 $N \times N$, P_S 矩阵和 P_L 矩阵分别为 $2^n \times (2^n - 1)$ 和 $(2^n - 1) \times 2^n$ 的置换矩阵.

使用快速 m 序列变换算法估计阻抗谱的流程如图 11 所示^[64]. 首先, 获取时域最大长度序列的响应信号. 然后, 借助两组转置矩阵和快速哈达码变换获得系统冲击响应. 最后, 对冲击响应做傅里叶变换得到系统的传递函数, 即实现了快速阻抗谱测试.

3.4 基于系统辨识的参数估计法

本文 2.4 节中已讨论到, 系统的频域辨识实质就是对系统传递函数的辨识. 因此, 系统的频域辨识方法也可以被应用于阻抗谱的快速测试. 伪随机二进制序列作为系统辨识的激励信号, 也有相

$$H_A = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

$$= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 1 & 1 & 0 \\ 1 & 1 & 1 \end{bmatrix} \begin{matrix} 0 \\ 1 \\ 2 \\ 3 \\ 4 \\ 5 \\ 6 \\ 7 \end{matrix} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6 & 7 \end{bmatrix}$$

$$\begin{matrix} [B] & [B^T] \end{matrix}$$

图 10 将使用二进制表示的西尔维斯特类型的哈达码矩阵进行分解^[64]

Fig. 10 Factorization of the Sylvester-type Hadamard matrix^[64]

关研究^[50,53,69-70]。如 Weddle 等以多组不同的伪随机二进制序列对锂离子电池电路模型进行激励,基于建立的阻抗谱模型和空间状态模型,采用系统辨识的方法,获取了较为精准的电化学阻抗谱^[3]。在 Weddle 等方法中,采用了 5 组不同时钟周期的激励信号扩展带宽,5 组信号时钟周期分别为: $T_s = 0.001 \text{ s}$, 0.01 s , 0.1 s , 1 s , 3 s 。并使用通带为 $[\pi/(500T_s), \pi/(2T_s)]$ 的五阶巴特沃斯通带滤波器对电流和电压信号进行滤波处理。随后,对各组信号进行系统辨识处理获取适用于某一段频率范围的参数模型。最后,通过引入权重函数 $\omega_n(\omega)$ 、加权变量

γ 和拼接算法(stitching algorithm)将各自适用于某一段频率的 5 个参数模型组合为适用于目标频段($2 \text{ mHz} \sim 500 \text{ Hz}$)的参数模型。

对基于系统辨识原理的快速阻抗谱测试,下面做一简要说明。对于系统辨识来说,在不同的模型辨识阶段,需要使用不同的模型结构并基于不同需求对模型进行等价转换^[71]。对于快速阻抗谱测试,如果激励输入和响应输出分别为电流信号和电压信号,采用单输入单输出连续系统状态空间模型描述如下:

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = Ax(t) + Bu(t), x(t_0) = x_0 \\ y(t) = Cx(t) + Du(t) \end{cases} \quad (37)$$

其中, $x(t) \in \mathbb{R}^n$ 为系统的状态变量, $u(t)$ 和 $y(t)$ 分别为电流激励输入和电压响应输出, $A \in \mathbb{R}^{n \times n}$ 为系统矩阵, $B \in \mathbb{R}^n$ 为控制矩阵, $C \in \mathbb{R}^{1 \times n}$ 为输出矩阵, $D \in \mathbb{R}$ 为前馈矩阵。特别说明一下,上述状态空间方程为线性的,在辨识过程中,激励信号幅值设置要合理,避免系统进入非线性区域。对式(37)进行拉普拉斯变换并令 $s = j\omega$,可得到阻抗谱表达式:

$$Z(j\omega) = C(j\omega I - A)^{-1}B + D \quad (38)$$

在式(38)中, I 为单位矩阵。计算机处理的信号必须为离散信号,因而需要将连续状态空间模型转化为离散状态空间模型,通常采用零阶保持器,对连续系统进行采样,从而实现离散化,得到如下离散状态空间方程:

$$\begin{cases} x(k+1) = Gx(k) + Fu(k) \\ y(k) = Cx(k) + Du(k) \end{cases} \quad (39)$$

在式(39)中, C 、 D 矩阵定义与连续系统状态空间方程 C 、 D 矩阵相同, G 、 F 矩阵定义如下:

$$G = e^{A\Delta t} \quad (40-1)$$

$$F = \int_0^{\Delta t} e^{A\tau} d\tau B = A^{-1}[G - I]B \quad (40-2)$$

其中, I 为适当维数的单位矩阵,当 A 矩阵可逆时,

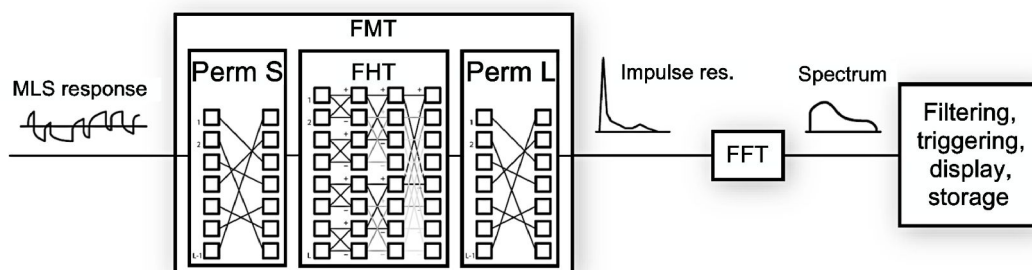


图 11 基于快速 m 序列变换的阻抗谱快速重构算法流程^[61]

Fig. 11 Flowchart of fast reconstruction algorithm for impedance spectrum based on fast m -sequence transformation^[61]

式(40-2)成立. 引入前移算子 Z 或者后移算子 Z^{-1} , 借助矩阵特征多项式, 式(39)可转化为差分形式方程:

$$(1 + a_1 Z^{-1} + a_2 Z^{-2} + \cdots + a_p Z^{-p})y(k) = (b_0 + b_1 Z^{-1} + b_2 Z^{-2} + \cdots + b_q Z^{-q})u(k) \quad (41-1)$$

即:

$$y(k) = -a_1 y(k-1) - a_2 y(k-2) - \cdots - a_p y(k-p) + b_0 u(k) + b_1 u(k-1) + \cdots + b_q u(k-q) \quad (41-2)$$

上式中, 参数 $a_1, a_2, \cdots, a_p, b_0, b_1, \cdots, b_q$ 表征系统的状态, 变量 $\theta = [a_1, a_2, \cdots, a_p, b_0, b_1, \cdots, b_q]$ 为待辨识参数矩阵, 预测模型输出值可表示为:

$$\hat{y}_k = -a_1 \hat{y}_{k-1} - a_2 \hat{y}_{k-2} - \cdots - a_p \hat{y}_{k-p} + b_0 u_k + b_1 u_{k-1} + \cdots + b_q u_{k-q} \quad (42)$$

初始值 $\hat{y}_{-1}, \cdots, \hat{y}_p$ 可设置为 0, 用于参数估计的矩阵可表示为:

$$\hat{\theta} = \operatorname{argmin}_{\theta} \sum_{k=1}^k (y_k - \hat{y}_k)^2 \quad (43)$$

通过式(42)实现预测值与估计值之间的差值最小化, 进而实现对变量参数矩阵的估计, 即参数估计问题可转换为递归最小二乘法问题. 通过递归最小二乘估计实现预测值与实际测试数据的最佳拟合, 进而实现变量参数矩阵的最优估计. 由上述讨论可知, 不同于基于离散傅里叶变换和小波变换的频域方法, 基于系统辨识方法的快速阻抗谱测试方法从时域信号出发, 对时域数据进行处理, 在时域完成模型参数的估计, 进而得到被测对象的阻抗谱.

上述讨论, 没有考虑噪声对参数辨识的影响. 在实际工程中, 噪声很难避免, 参数估计自然为有偏估计^[72]. 当输入和输出信号都采用含噪模型, 可以使用总体最小二乘法(total least square)进行参数估计^[72-73]. 如果只有部分信号受噪声的影响, 为了实现参数辨识目标, 此时采用基于广义奇异值分解(generalized singular value decomposition)的广义总体最小二乘法(generalized total least square), 将更为灵活^[9, 73-76].

4 快速阻抗谱在电化学领域的应用举例

在电化学工程应用和科学研究中, 电化学阻抗谱的作用几乎不可替代. 如果电化学阻抗谱从耗时的传统测试进化到快速的现代测试, 那么它将在实时状态估计和在线安全预警领域发挥更加重要的

作用, 其应用范围也将更加广泛而深入. 上文从伪随机二进制序列和估计算法两个方面, 综述讨论了快速阻抗谱测试的研究进展. 下面, 作者将给出基于伪随机二进制序列(PRBS)快速阻抗谱测试的几个典型应用案例, 举例的重点将放在电化学应用领域, 如阀控铅酸电池^[1-2]、锂离子电池^[3-6]、超级电容器^[7-8]、质子交换膜燃料电池^[9-12]. 电化学能量存储与转换设备的安全高效稳定运行, 往往依赖于对其状态的有效管理和实时监控, 如荷电状态(state of charge)、健康状态(state of health)、功率状态(state of power)和老化状态(state of ageing)等. 为了实现能量存储与转换设备的有效管理, 必须首先实现状态监控和实时诊断, 而电化学阻抗谱恰好具备上述能力.

4.1 在铅酸电池领域的应用

铅酸电池由于其安全性、稳定性和可回收利用等优势, 在储能领域仍然发挥重要作用. 铅酸电池的健康状态和荷电状态与其阻抗模型参数密切相关, 因此, 电路模型参数可以作为一种简单高效的状态指示器. Fairweather 等采用 PRBS 作为激励信号扰动阀控铅酸电池^[1], 然后采用图 1 所示快速阻抗谱测试流程图和 FFT 快速算法, 计算得到了电池阻抗谱以及电路模型参数双层电容, 后者被用作电池健康状态的指示器. 随后, Fairweather 等继续采用上述方法, 深入研究了健康状态和电池荷电状态同电池电路模型参数的对应关系^[2].

4.2 在锂离子电池领域的应用

当前, 锂离子电池是最为广泛使用的电池种类之一, 有着高能量密度、清洁无污染等优点^[77], 对锂离子电池阻抗谱的快速测试也是当前快速阻抗谱测试技术较为主要的探索方向之一.

图 12 为锂离子电池的分数阶阻抗模型及相应的阻抗谱仿真结果示意图, 模型各参数设置如下: $L = 6 \times 10^{-8} \text{ H}$, $R_s = 10^{-2} \Omega$, $Q_1 = 10 \text{ S} \cdot \text{s}^{\alpha_1}$, $Q_2 = 10 \text{ S} \cdot \text{s}^{\alpha_2}$, $R_1 = 3.5 \times 10^{-3} \Omega$, $R_2 = 2.5 \times 10^{-3} \Omega$, $C_{\text{int}} = 5 \times 10^5 \text{ F}$. $Z_{\omega \infty}$ 和 CPE 的定义如式(44)、式(45)所示^[30]:

$$Z_{\omega \infty} = \frac{\sqrt{2} \sigma}{\sqrt{j\omega}} \quad (44)$$

$$Z_{\text{CPE}} = \frac{1}{Q(j\omega)^{\alpha}} \quad (45)$$

图 12(A)中阻抗模型与实际物理过程的对应关系为: L 代表高频电感, R_s 代表电极、电解液、连接器等各部分所导致的欧姆电阻, $R_1 // \text{CPE}_1$ 单元代

表 SEI 层的扩散阻抗, $R_2//CPE_2$ 单元代表电极/电解液界面的电荷转移阻抗, $Z_{w\infty}$ 代表半无限扩散条件下多孔电极中的离子扩散行为, C_{int} 代表低扰动条件下电极上的离子累积效应. 由图 12 (A) 和图 12(B) 间的对应关系可知, 因恒相位单元和电感行为的存在, 高频截距并不完全等于欧姆电阻 R_s , 对于具有低欧姆电阻的动力锂离子电池尤其如此. 图 12(B) 中, f_1 、 f_2 分别为 $R_1//CPE_1$ 、 $R_2//CPE_2$ 的特征频率, f_i 为动力学过程过渡为扩散过程的转折频率^[30]. 其中, $Z_{w\infty}$ 所代表的低频 warburg 阻抗部分, 因其对应的时间常数较长且测试过程中易导致电池状态偏移等因素, 相比于中高频部分的阻抗更难检测, 在阻抗谱测试和诊断中占有较为重要的地位, 对其的研究始终是电化学较为重要的问题之一.

当前, 锂离子电池最为重要的应用领域之一为电动汽车. 电动汽车技术中, 电池堆的有效管理和实时监控直接决定和影响电动汽车的安全和寿命. 电池荷电状态和健康状态与其内阻密切相关, 在线实时内阻测试是电池状态实时监控的最有效手段之一. 下述三个快速阻抗测试案例都

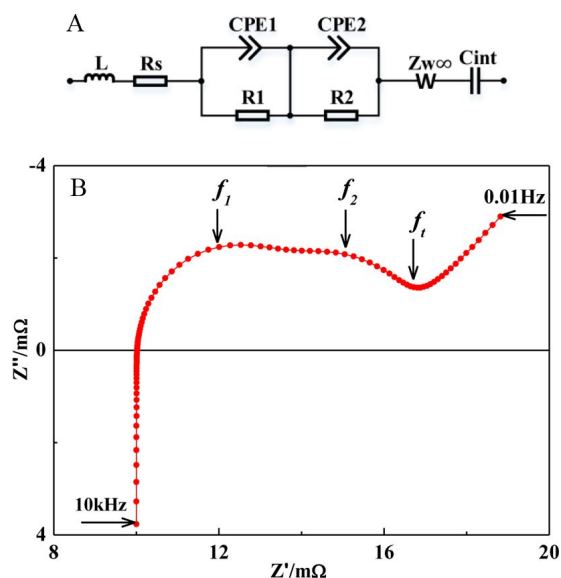


图 12 锂离子电池分数阶阻抗模型及其对应阻抗谱仿真结果^[30]. (A) 分数阶阻抗模型; (B) 0.01 Hz ~ 10 kHz 的阻抗谱仿真结果

Fig. 12 Equivalent circuit model and its corresponding impedance simulation for LIB^[30]. (A) A fractional impedance model, and (B) impedance simulation from 0.01 Hz to 10 kHz

是采用 PRBS 作为电流激励信号: 1) 在记录 26650LFP 锂离子电池的输出响应信号后, Alavi 等在时域直接拟合得到其分数阶模型参数, 这些参数可以作为电池的状态指示器^[78]; 2) Sihvo 等记录 NMC 锂离子电池堆的输出电压响应, 采用 FFT 快速算法, 计算得到电池堆的阻抗谱, 初步检验了快速阻抗谱实现电池堆的荷电状态和健康状态的在线监控^[4]; 3) Nejad 等进行了与 Sihvo 等类似的工作^[70]. Nejad 等的研究表明, 随着电池荷电状态和温度的降低, 阻抗幅值随之降低, 因而通过对阻抗谱的估计可以间接实现对电池荷电状态、电池健康状态以及电池温度的估计.

4.3 在超级电容器领域的应用

超级电池是超级电容器技术和铅酸电池技术的融合体, 同时具备两者的优点: 充放电快和价格低廉. 但是, 其运行特性既不同于超级电容器, 也不同于铅酸电池. 因此, 寻找一个合适的阻抗模型是有效管理超级电池的前提条件. 为了在线识别超级电池阻抗模型, Fairweather 等采用 PRBS 作为电路激励信号, 采用 FFT 算法, 快速计算得到超级电池的阻抗谱, 实现了模型在线辨识^[8]. 为了在线监测超级电容器的老化, Shi 等也采用 PRBS 作为电路激励信号, 采用扩展卡尔曼观测器, 在线得到了超级电容器的阻抗谱^[7]. 研究结果表明, 串联电阻 R_s 随老化程度增加逐渐增大, 并联电容 C 随老化程度增加呈现出先减小后增大再减小的变化趋势, 并联电阻 R_p 随老化程度增加逐渐减小. 上述研究结果表明通过等效电路模型参数评估超级电容器老化状态是可行的, 即借助快速阻抗谱测试可实现超级电容器老化状态的在线监控.

4.4 在质子交换膜燃料电池领域的应用

由于高效率、零污染、低噪音、高功率密度和启动快等优点, 质子交换膜燃料电池 (PEMFC) 和锂离子电池一起被视作可用于电动汽车的最具竞争力的储能装置^[79]. PEMFC 的效率高度依赖于其运行条件^[80], 比如温度、湿度和流量. 为了确保 PEMFC 工作在最优状态, 在稳态和瞬态条件下, 对燃料电池内部现象进行监测和研究是十分必要的, 比如 PEMFC 内部水的产生以及输出速度, 直接影响电池的性能和寿命. 因此, 参数识别是任何在线监控或者诊断的核心, 尤其是阻抗谱参数的实时识别. 下面列举 PEMFC 阻抗模型参数在线辨识的应用实例, 它们均是以 PRBS 电流为激励信号: 1)

Forrai 等结合电流中断技术^[12],运用著名的自回归外生模型(ARX),借助黑匣子识别技术,拟合得到 PEMFC 的复阻抗模型.实时辨识的模型参数被用于运行控制,实现最小的极化损失和最高的运行效率,即保证 PEMFC 最优的运行状态;2)Debenjak 等借助复 Morlet 小波变换算法^[11],在 60 s 时间内计算得到带宽为 0.1 Hz ~ 500 Hz 的阻抗谱,该在线阻抗谱测试方法可用于管理电池堆功率输出;3)不同于 Forrai 等^[12]和 Debenjak 等^[11],Manganiello 等采用了双 PRBS 电流为激励信号^[10],采用常规的 FFT 快速算法,基于 FPGA 硬件平台实现了数字信号处理,该低成本嵌入式系统为 PEMFC 等电化学系统提供了一个实时监控和在线诊断的平台.

5 结论与展望

考量快速阻抗谱测试,激励信号和快速算法是其内在的理论基础,而应用需求是其外在的驱动力.本文主要从扰动信号的类型、快速算法的实现以及能源领域的应用三个方面,对快速阻抗谱测试进行了综述和讨论.在全面综述基础上,作者对快速阻抗谱测试的技术挑战进行了总结和归纳,并给出其未来的研究方向和发展趋势.

5.1 综述总结

本文以快速测试的基本流程为主线,进行了如下综述:

1) 重点讨论比较五种不同的 PRBS 信号,即典型伪随机二进制序列、混合伪随机二进制序列、离散区间二进制序列、正交伪随机二进制序列和变幅值伪随机二进制序列.我们的分析表明,尽管伪随机二进制序列存在有效带宽受寄存器阶数 n 限制和频谱泄露等问题,但是它仍存在诸多优点,比如良好的频率分辨率、有效频带范围可控、较小的峰值因数、可通过反馈移位寄存器生成、在有效频带范围频谱幅值较为平坦等优点.因此,PRBS 在快速阻抗谱测试方面表现出了良好的应用前景.

2) 在不同 PRBS 信号激励下,讨论了相应快速算法,即四种典型快速算法:离散傅里叶变换 DFT 或者 FFT、小波变化 WT、系统辨识以及快速 m 序列变换.

离散傅里叶变换(DFT)在快速阻抗谱测试中有着最为广泛的应用,通常采用快速傅里叶变换算法(FFT)实现离散傅里叶变换 DFT.小波变化(WT)相对于离散傅里叶变换存在可记录时域信

息,灵活的时频分辨率的优点,但其计算相对复杂,对硬件的要求更高一些.系统辨识从时域的角度进行参数估计实现快速阻抗谱测试,将噪声作为变量引入计算过程,可一定程度上减轻噪声的影响,取得更佳的测试效果.快速 m 序列变换基于最大长度序列的特征对特征 m 序列进行数据排序和哈达码变换得到系统冲击响应,对冲击响应做傅里叶分析得到阻抗谱.总之,各个算法具有各自的特点,在进行快速阻抗谱测试或者识别时,应同时考虑被测对象的特性和应用场景,最后做出综合判断.

最后,作者给出了基于伪随机二进制序列(PRBS)快速阻抗谱测试的典型应用案例,重点放在电化学能源领域,比如阀控铅酸电池^[1-2]、锂离子电池^[3-6]、超级电容器^[7-8]和质子交换膜燃料电池^[9-12].上述典型应用案例,不仅校验了快速阻抗谱测试的基本原理,而且校验了其状态监控和动力学机理诊断功能.

5.2 技术挑战

经过最近二十多年快速发展,快速阻抗谱测试取得了不俗进展.仍然存在的技术挑战如下:

1) 如何平衡激励信号与估计算法的复杂度.传统阻抗测试方法中,使用单频正弦信号作为激励信号,一次激励完成一个频率点测试,且可以对目标频率点进行多次测试取平均,测试精度高,但是测试时间较长.快速阻抗测试使用宽带激励信号,包含多频率成分,加之固有频谱泄露和噪声等因素干扰,解析难度较大,且测试精度受限.一般而言,在固定时间段内激励信号频率成分越简单,估计算法的计算负担越小,计算消耗时间越短,精度越高,但是完成相应频段范围阻抗测试所需时间越长.反之,则会面临计算负担大、测试时间长和测试精度低等问题.因而,仍需探索如何设计激励信号以及相应的处理算法,从而平衡激励信号与估计算法的复杂度.

2) 如何根据测试目的选择最优的估计算法.以典型的小波变换与离散傅里叶变换为例,相比离散傅里叶变换,小波变换在获取频率信息的同时,可以获取时刻信息,但其计算负担稍大.因此,需要考量获取的时间信息在应用场景中的具体价值,评估增加运算成本所获取的时刻信息是否必要.上述命题,同样也存在于参数法与非参数法的快速阻抗谱测试中.参数法基于模型而设计,所得

到的响应信号大多与应用目的所切合,如用于 SOC 估计的参数法可直接由参数模型实现 SOC 估计;而非参数法直接获取测试对象的完整阻抗谱或者传递函数,需要进一步对输出结果做合理的量化处理,方可应用于工程实践中.可见,相比非参数法,参数法更加复杂,但获取的信息更加完整,需要根据测试目的,选取更加合适的估计算法.

3) 如何根据具体应用场景设计硬件测试系统.硬件平台是激励信号和估计算法实现必不可少的一环,硬件平台需要满足采样频率、数据精度、抗干扰、低成本、体积小和实时性等要求,同时满足上述要求,已然是一项严峻的挑战.现有报导的硬件实现方案,大体分为独立测试模块和非独立测试模块两大类,二者区别主要在于采用主动式激励信号还是被动式激励信号.独立阻抗测试模块可以主动向被测系统施加激励信号,激励信号可控、激励时刻和测试信息更为清晰,但独立设计也使其成本更高和不利于嵌入式实现.非独立阻抗测试模块借助系统已有设备,如电池均衡电路、AC/DC 转换器、DC/DC 转换器等在运行过程中所产生的电流电压信号作为激励信号,因此成本更低,易于嵌入实现.然而,由于被动式激励信号的特殊性,它具有高度的不可控,同时存在较多限制,因而设计难度相对更大.对于快速阻抗谱的硬件实现,当前研究仍处于探索阶段,需要重点考量如何根据具体应用场景设计硬件测试系统.

5.3 发展趋势

当前信号处理技术相当成熟,已有足够力量支撑起快速阻抗测试.作者认为,当前快速阻抗谱测试研究的不足之处在于其仍停留在传统等效电路模型基础上,改进当前等效电路模型,对特定的应用对象,比如锂离子电池,深入探索其电化学主导的电学输出特性,将电池内部动力学特性直接反映到外部电学输出特性上,或许可以大幅推进阻抗谱快速测试的研究.除此之外,还可尝试从如下三个方向,推动阻抗谱快速测试发展.

1) 设计新的激励信号.结合具体应用目标和场景,对宽带激励信号的幅值、频率组成等进行优化,避免激励信号包含大量无用频率信息、减小噪声干扰等,实现特定信号与特定应用场景的匹配.

2) 设计新的估计算法.在激励信号和硬件平台固定情况下,综合考量特定应用对象和特定的应用场景,设计新的估计算法,降低噪声干扰,加

快计算速度,提高测试精度,实现阻抗谱快速测试.

3) 设计新的硬件方案.我们认为,在合理控制成本的情况下,设置主动激励的独立阻抗谱快速测试模块,具有更好通用性,便于在不同应用场景快速移植.而对于被动激励的非独立阻抗谱测试模块方案,如果结合具体的应用背景,优化电路的整体设计,实现更低成本的快速阻抗测试也是可能的.

伴随着伪随机二进制序列快速生成与快速算法理论的日益完善,相关硬件技术的快速发展,以及工程应用内在需求的市场推动,基于伪随机二进制序列的快速阻抗谱测试必将日益成熟,也必将在电化学系统状态的实时监控和动力学机理诊断中发挥更加重要的作用.

参考文献(References):

- [1] Fairweather A J, Foster M P, Stone D A. Battery parameter identification with Pseudo Random Binary Sequence excitation (PRBS)[J]. Journal of Power Sources, 2011, 196(22): 9398-9406.
- [2] Fairweather A J, Foster M P, Stone D A. Modelling of VRLA batteries over operational temperature range using Pseudo Random Binary Sequences[J]. Journal of Power Sources, 2012, 207: 56-59.
- [3] Weddle P J, Kee R J, Vincent T. A stitching algorithm to identify wide-bandwidth electrochemical impedance spectra for Li-ion batteries using binary perturbations[J]. Journal of The Electrochemical Society, 2018, 165(9): A1679-A1684.
- [4] Sihvo J, Messo T, Roinila T, et al. Online internal impedance measurements of Li-ion battery using PRBS broadband excitation and fourier techniques: methods and injection design[C]//IEEE. 2018 International Power Electronics Conference (IPEC-Niigata 2018-ECCE Asia), May 20-24, 2018, Niigata, Japan. New York: IEEE, 2018: 2470-2475.
- [5] Dai H F, Xu T J, Zhu L T, et al. Adaptive model parameter identification for large capacity Li-ion batteries on separated time scales[J]. Applied Energy, 2016, 184: 119-131.
- [6] Al Nazer R, Cattin V, Granjon P, et al. Broadband identification of battery electrical impedance for HEVs[J]. IEEE Transactions on Vehicular Technology, 2013, 62(7): 2896-2905.
- [7] Shi Z, Auger F, Schaeffer E, et al. Interconnected observers for online supercapacitor ageing monitoring [C]//IEEE. IECON 2013-39th Annual Conference of the IEEE, November 10-13, 2013, Vienna, Austria. New York: IEEE,

- 2013:6746-6751.
- [8] Fairweather A J, Stone D A, Foster M P. Evaluation of UltraBattery™ performance in comparison with a battery-supercapacitor parallel network[J]. *Journal of Power Sources*, 2013, 226: 191-201.
- [9] Ritzberger D, Striednig M, Simon C, et al. Online estimation of the electrochemical impedance of polymer electrolyte membrane fuel cells using broad-band current excitation[J]. *Journal of Power Sources*, 2018, 405: 150-161.
- [10] Manganiello P, Petrone G, Giannattasio M, et al. FPGA implementation of the EIS technique for the on-line diagnosis of fuel-cell systems[C]//IEEE. 2017 IEEE 26th International Symposium on Industrial Electronics (ISIE 2017), June 19-21, 2017, Edinburgh, United Kingdom. New York: IEEE, 2017: 981-986.
- [11] Debenjak A, Boskoski P, Musizza B, et al. Fast measurement of proton exchange membrane fuel cell impedance based on pseudo-random binary sequence perturbation signals and continuous wavelet transform[J]. *Journal of Power Sources*, 2014, 254: 112-118.
- [12] Forrai A, Funato H, Yanagita Y, et al. Fuel-cell parameter estimation and diagnostics[J]. *IEEE Transactions on Energy Conversion*, 2005, 20(3): 668-675.
- [13] Hamilton T J, Van Schaik A, Cornell B. Measuring the impedance of a tethered bilayer membrane biosensor[C]//IEEE. 2008 IEEE Biomedical Circuits and Systems Conference - Intelligent Biomedical Systems (BioCAS), November 20-22, 2008, Baltimore, Maryland. New York: IEEE, 2008: 361-364.
- [14] Min M, Ojarand J, Märtens O, et al. Binary signals in impedance spectroscopy[C]//IEEE. 2012 Annual International Conference of the IEEE Engineering in Medicine and Biology Society, August 28-September 1, San Diego, California USA, New York: IEEE, 2012: 134-137.
- [15] Sanchez B, Vandersteen G, Bragos R, et al. Basics of broadband impedance spectroscopy measurements using periodic excitations[J]. *Measurement Science and Technology*, 2012, 23(10): 105501.
- [16] Min M, Paavle T. Broadband discrete-level excitations for improved extraction of information in bioimpedance measurements[J]. *Physiological Measurement*, 2014, 35(6): 997-1010.
- [17] Roinila T, Messo T, Santi E. MIMO-identification techniques for rapid impedance-based stability assessment of three-phase systems in DQ domain[J]. *IEEE Transactions on Power Electronics*, 2018, 33(5): 4015-4022.
- [18] Roinila T, Messo T. Online grid-impedance measurement using ternary-sequence injection[J]. *IEEE Transactions on Industry Applications*, 2018, 54(5): 5097-5103.
- [19] AlyanNezhadi M M, Hassanpour H, Zare F. A new high frequency grid impedance estimation technique for the frequency range of 2 to 150 kHz[J]. *International Journal of Engineering*, 2018, 31(10): 1666-1674.
- [20] Messo T, Luhtala R, Roinila T, et al. Real-time impedance-based stability assessment of grid converter interactions [C]//IEEE. 2017 IEEE 18th Workshop on Control and Modeling for Power Electronics (COMPEL 2017), July 9-12, 2017, Stanford, California, USA. New York: IEEE, 2017: 1-8.
- [21] Luhtala R, Messo T, Reinikka T, et al. Adaptive control of grid-connected inverters based on real-time measurements of grid impedance: DQ-domain approach [C]//IEEE. 2017 IEEE Energy Conversion Congress and Exposition (ECCE 2017), October 1-5, 2017, Cincinnati, Ohio, USA. New York: IEEE, 2017: 69-75.
- [22] Tewari U, Neshvad S, Goldbach D, et al. Verification and implementation of pseudo-random-binary-sequences for online determination of grid impedance spectrum[J]. *The Renewable Energy & Power Quality Journal*, 2015, 1 (13): 596-601.
- [23] Roinila T, Messo T, Suntio T, et al. Pseudo-random sequences in DQ-domain analysis of feedforward control in grid-connected inverters[J]. *IFAC-PapersOnLine*, 2015, 48 (28): 1301-1306.
- [24] Neshvad S, Chatzinotas S, Sachau J. Online determination of grid impedance spectrum through pseudo-random excitation of a pulse width modulator[J]. *Renewable Energy & Power Quality Journal*, 2014, 1(12): 316-321.
- [25] Roinila T, Vilkkio M, Sun J. Online grid impedance measurement using discrete-interval binary sequence injection[J]. *IEEE Journal of Emerging and Selected Topics in Power Electronics*, 2014, 2(4): 985-993.
- [26] Huang Q A, Hui R, Wang B, et al. A review of AC impedance modeling and validation in SOFC diagnosis[J]. *Electrochimica Acta*, 2007, 52(28): 8144-8164.
- [27] Yuan X, Wang H, Sun J C, et al. AC impedance technique in PEM fuel cell diagnosis — A review[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2007, 32(17): 4365-4380.
- [28] Yuan X Z R, Song C, Wang H, et al. Electrochemical impedance spectroscopy in PEM fuel cells: fundamentals and applications[M]. London: Springer Science & Business Media, 2009.
- [29] Huang Q A, Park S M. Unified model for transient faradaic impedance spectroscopy: theory and prediction

- [J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2012, 116(32): 16939-16950.
- [30] Huang Q A, Shen Y, Huang Y, et al. Impedance characteristics and diagnoses of automotive lithium-ion batteries at 7.5% to 93.0% state of charge[J]. Electrochimica Acta, 2016, 219: 751-765.
- [31] Huang Q A, Li Y, Tsay K C, et al. Multi-scale impedance model for supercapacitor porous electrodes: Theoretical prediction and experimental validation[J]. Journal of Power Sources, 2018, 400: 69-86.
- [32] Li W H, Huang Q A, Yang C P, et al. A fast measurement of Warburg-like impedance spectra with Morlet wavelet transform for electrochemical energy devices[J]. Electrochimica Acta, 2019, 322 : UNSP 134760.
- [33] Xiong R, Tian J P, Mu H, et al. A systematic model-based degradation behavior recognition and health monitoring method for lithium-ion batteries[J]. Applied Energy, 2017, 207: 372-383.
- [34] Zhou X, Pan Z Q, Han X B, et al. An easy-to-implement multi-point impedance technique for monitoring aging of lithium ion batteries[J]. Journal of Power Sources, 2019, 417: 188-192.
- [35] Yoo J S, Park S M. An electrochemical impedance measurement technique employing Fourier transform[J]. Analytical Chemistry, 2000, 72(9): 2035-2041.
- [36] Nam K M, Shin D H, Jung N, et al. Development of galvanostatic Fourier transform electrochemical impedance spectroscopy[J]. Analytical Chemistry, 2013, 85(4): 2246-2252.
- [37] Itagaki M, Ueno M, Hoshi Y, et al. Simultaneous determination of electrochemical impedance of lithium-ion rechargeable batteries with measurement of charge-discharge curves by wavelet transformation[J]. Electrochimica Acta, 2017, 235: 384-389.
- [38] de Beer C, Barendse P S, Pillay P. Fuel cell condition monitoring using optimized broadband impedance spectroscopy[J]. IEEE Transactions on Industrial Electronics, 2015, 62(8): 5306-5316.
- [39] Slepiski P, Darowicki K. Optimization of impedance measurements using ‘chirp’ type perturbation signal[J]. Measurement, 2009, 42(8): 1220-1225.
- [40] Pintelon R, Schoukens J. System identification: a frequency domain approach[M]. Hoboken: John Wiley & Sons, 2012.
- [41] Tan A H, Godfrey K R. The generation of binary and near-binary pseudorandom signals: An overview[J]. IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement, 2002, 51(4): 583-588.
- [42] Sun T, Gawad S, Bernabini C, et al. Broadband single cell impedance spectroscopy using maximum length sequences: theoretical analysis and practical considerations [J]. Measurement Science and Technology, 2007, 18(9): 2859-2868.
- [43] Davies, W. D T . System identification for self-adaptive control[M]. Hoboken: Wiley-Interscience, 1970.
- [44] Davidson J N, Stone D A, Foster M P, et al. Improved bandwidth and noise resilience in thermal impedance spectroscopy by mixing PRBS signals[J]. IEEE transactions on Power Electronics, 2014, 29(9): 4817-4828.
- [45] Bos A V D, Krol R. Synthesis of discrete-interval binary signals with specified Fourier amplitude spectra[J]. International Journal of Control, 1979, 30(5): 871-884.
- [46] Briggs P A N, Godfrey K R. Pseudorandom signals for the dynamic analysis of multivariable systems [J]. Proceedings of the Institution of Electrical Engineers. 1966, 113(7): 1259-1267.
- [47] Sung S W, Lee J H. Pseudo-random binary sequence design for finite impulse response identification[J]. Control Engineering Practice, 2003, 11(8): 935-947.
- [48] Amrani M E H, Dowdeswell R M, Payne P A, et al. Pseudo-random binary sequence interrogation technique for gas sensors[J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 1998, 47(1/3): 118-124.
- [49] Rivera D E, Jun K S. An integrated identification and control design methodology for multivariable process system applications[J]. IEEE Control Systems, 2000, 20(3): 25-37.
- [50] Yao L, Zhao J, Qian J. An improved pseudo-random binary sequence design for multivariable system identification (A16-395)[C]//IEEE. 2006 6th World Congress on Intelligent Control and Automation, June 21-23, 2006, Dalian, China. New York: IEEE, 2006, 1: 1768-1772.
- [51] Briggs P, Godfrey K. Design of uncorrelated signals[J]. Electronics Letters, 1976, 12(21): 555-556.
- [52] Tan A H, Godfrey K R, Barker H A. Design of ternary signals for MIMO identification in the presence of noise and nonlinear distortion[J]. IEEE Transactions on Control Systems Technology, 2009, 17(4): 926-933.
- [53] Tan A H, Barker H A, Godfrey K R. Identification of multi-input systems using simultaneous perturbation by pseudo-random input signals[J]. IET Control Theory & Applications, 2015, 9(15): 2283-2292.
- [54] Godfrey K. Perturbation signals for system identification [M]. Hemel Hempstead: Prentice Hall International (UK) Ltd., 1993.
- [55] Roinila T, Abdollahi H, Arrua S, et al. Online measure-

- ment of bus impedance of interconnected power electronics systems: Applying orthogonal sequences[C]//IEEE. 2017 IEEE Energy Conversion Congress and Exposition (ECCE 2017), October 1-5, 2017, Cincinnati, Ohio, USA. New York: IEEE, 2017: 5783-5788.
- [56] Roinila T, Abdollahi H, Arrua S, et al. MIMO identification techniques in online measurement of bus impedance of in terconnected power-electronics systems[C]//IEEE. 2017 IEEE Electric Ship Technologies Symposium (ESTS 2017), August 14-17, 2017, Arlington, Virginia, USA. New York:IEEE, 2017: 316-321.
- [57] Liu Chun-Lin. A tutorial of the wavelet transform[EB/OL]. (2010-02-23). <http://disp.ee.ntu.edu.tw/tutorial/Wavelet-Tutorial.pdf>
- [58] Hoshi Y, Yakabe N, Isobe K, et al. Wavelet transformation to determine impedance spectra of lithium-ion rechargeable battery[J]. Journal of Power Sources, 2016, 315: 351-358.
- [59] Cohn M, Lempel A. On fast M-sequence transforms (Corresp.)[J]. IEEE Transactions on Information Theory, 1977, 23(1): 135-137.
- [60] Xiang N. Using M-sequences for determining the impulse responses of LTI-systems[J]. Signal Processing, 1992, 28 (2): 139-152.
- [61] Gawad S, Sun T, Green N G, et al. Impedance spectroscopy using maximum length sequences: Application to single cell analysis[J]. Review of Scientific Instruments, 2007, 78(5): 054301.
- [62] Rife D D, Vanderkooy J. Transfer-function measurement with maximum-length sequences[J]. Journal of the Audio Engineering Society, 1989, 37(6): 419-444.
- [63] Huang X D(黄翔东), Li W Y(李文元), Wang Z H(王兆华). Determination algorithm for impulse responses of LTI-meshwork based on fast m-sequence transform [J]. Journal of Data Acquisition & Processing(数据采集与处理), 2006, 21(2):142-148.
- [64] Chu W T. Impulse-response and reverberation-decay measurements made by using a periodic pseudorandom sequence[J]. Applied Acoustics, 1990, 29(3):193-205.
- [65] Manz J. A sequency-ordered fast Walsh transform[J]. IEEE Transactions on Audio and Electroacoustics, 1972, 20(3): 204-205.
- [66] Harwit M. Hadamard transform optics[M]. Amsterdam: Elsevier, 2012.
- [67] Berlekamp E. Algebraic coding theory[M]. Singapore: World Scientific Publishing Co Pte Ltd, 1968.
- [68] Delsarte P, Goethals J M, Mac Williams F J. On generalized Reed Muller codes and their relatives[J]. Information and Control, 1970, 16(5): 403-442.
- [69] Al Nazer R, Cattin V, Granjon P, et al. Classical EIS and square pattern signals comparison based on a well-known reference impedance[J]. World Electric Vehicle Journal, 2013, 6(3): 800-806.
- [70] Nejad S, Gladwin D T, Stone D A. A hybrid battery parameter identification concept for lithium-ion energy storage applications[C]//IEEE. IECON 2016 - 42nd Annual Conference of the IEEE Industrial Electronics Society, October 24-27, 2016, Florence, Italy. New York: IEEE, 2016: 1980-1985.
- [71] Ding F(丁锋). System identification. Part B: Basic models for system description[J]. Journal of Nanjing University of Information Science and Technology: Natural Science Edition(南京信息工程大学学报(自然科学版)), 2011, 3 (2): 97-117.
- [72] Fridholm B, Wik T, Nilsson M. Robust recursive impedance estimation for automotive lithium-ion batteries[J]. Journal of Power Sources, 2016, 304: 33-41.
- [73] Van Huffel S, Lemmerling P. Total least squares and errors-in-variables modeling: analysis, algorithms and applications[M]. London: Springer Science & Business Media, 2013.
- [74] Huffel S V, Vandewalle J. Analysis and properties of the generalized total least squares problem $AX \approx B$ when some or all columns in A are subject to error[J]. SIAM Journal on Matrix Analysis and Applications, 1989, 10 (3): 294-315.
- [75] Paige C C, Wei M. Analysis of the generalized total least squares problem $AX \approx B$ when some columns of A are free of error[J]. Numerische Mathematik, 1993, 65(1): 177-202.
- [76] Jakubek S, Hametner C. Identification of neurofuzzy models using GTLS parameter estimation[J]. IEEE Transactions on Systems Man And Cybernetics Part B - Cybernetics, 2009, 39(5): 1121-1133.
- [77] Hu G X(胡广侠), Xie J Y(解晶莹). Some consideration for lithium-ion cells' safety[J]. Journal of Electrochemistry (电化学), 2002, 8(3): 245-251.
- [78] Alavi S M M, Birkel C R, Howey D A. Time-domain fitting of battery electrochemical impedance models[J]. Journal of Power Sources, 2015, 288: 345-352.
- [79] Guo J W(郭建伟), Wang J L(王建龙). The pilot application of electrochemical impedance spectroscopy on dynamic proton exchange membranefuel cell[J]. Journal of Electrochemistry(电化学), 2018, 24(6): 687-696.
- [80] Xiao Y(肖燕), Chang Y J(常英杰), Zhang W(张伟). Simulation analysis in dynamic performance of proton exchange membrane fuel cell under starting condition[J]. Journal of Electrochemistry(电化学), 2018, 24(2): 166-173.

Recent Advancement in Pseudo-Random Binary Sequence Signals-Based Fast Reconstruction of Impedance Spectrum and Its Applications in Electrochemical Energy Sources

LI Wei-heng^{1,2}, HUANG Qiu-an^{2*}, YANG Wei-ming³,
YANG Chang-ping¹, ZHANG Jiu-jun^{2*}

(1. Faculty of Physics & Electronic Science, Hubei University, Wuhan 430062, China; 2. Institute for Sustainable Energy, Shanghai University, Shanghai 200444, China; 3. School of Computer Science and Information Engineering, Hubei University, Wuhan 430062, China)

Abstract: With the extensive application of impedance spectroscopy, the time-consuming issue of its traditional testing methods has become more and more serious, which limits its application range. In the study of accelerating impedance measurement or reconstruction, the synthesis of wideband excitation signals and the design of high efficiency estimation algorithms have been identified as important ways. In view of the purpose of rapid impedance reconstruction, Pseudo-Random Binary Sequence (PRBS) has the advantages of flat power spectrum and easy generation, and has a good application prospect. This paper reviews three core issues in rapid reconstruction of impedance spectrum: PRBS signal types, different fast algorithms, and their typical applications in the field of electrochemical energy. For the PRBS signal types, namely, the maximum length sequence signal, the hybrid PRBS, the discrete interval binary sequence and the orthogonal PRBS, their respective characteristics and application ranges are discussed. For the fast algorithms corresponding to different PRBS excitation signals, namely, the discrete Fourier transform/Fast Fourier transform, wavelet transform, fast m-sequence transform, parameter estimation algorithm based on system identification, and their respective characteristics and application scope, this paper has carried out in-depth analysis on computation efficiency and calculation precision for fast reconstruction of impedance spectrum. For the application of rapid impedance spectrum measurement based on PRBS, the electrochemical energy sources such as lead-acid batteries, lithium-ion batteries, proton exchange membrane fuel cells and supercapacitors are taken as examples to verify the feasibility of its application. In order to promote the further improvement of technology, this paper summarizes and analyzes the challenges in rapid measurements or reconstruction of impedance spectrum based on PRBS signals, and proposes the future research strategy necessary to overcome these challenges: 1) design hardware test system according to specific application scenarios; 2) choose the optimal estimation algorithms based on the test object; 3) balance the complexity between excitation signal generation and impedance estimation algorithms.

Key Words: impedance spectroscopy; fast measurement; pseudo-random binary sequence; estimation algorithm; electrochemical energy