

# 锂离子电池交流阻抗谱应用

陈金荣

上海理工大学机械工程学院, 上海

收稿日期: 2024年4月18日; 录用日期: 2024年5月24日; 发布日期: 2024年5月31日

## 摘要

随着环境保护意识的增强, 锂离子电池作为一种车用动力电池得到了广泛应用。然而, 如何准确测试电池的荷电状态、识别过充、过放和内部短路等问题仍然是一个挑战。本研究采用电化学阻抗谱 (Electrochemical Impedance Spectroscopy, EIS) 技术探究了有效评估三元锂电池状态的方法。本研究在不同荷电状态 (State of Charge, SOC) 条件下对电池进行了EIS测试, 并在过充、过放以及内部短路情况下进行了相应的电化学阻抗实验, 从而得出结论, 验证了EIS用于估计各种电池状态以及诊断电池故障的适用性。此外, 作为EIS的补充手段, 本研究还采用了弛豫时间分布法对不同状态下的电池进行了测试, 并将结果与EIS测试进行了对比, 以得出最终的结论。

## 关键词

三元锂离子电池, 电化学阻抗谱, 弛豫时间分布

# Application of Impedance Spectroscopy for Lithium Battery

Jinrong Chen

School of Mechanical Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai

Received: Apr. 18<sup>th</sup>, 2024; accepted: May 24<sup>th</sup>, 2024; published: May 31<sup>st</sup>, 2024

## Abstract

With the increasing awareness of environmental protection, lithium-ion batteries have been widely used as an automotive power battery. However, it is still a challenge to accurately test the charge state, health state, and identify overcharge, overdischarge, and internal short circuit of the battery. In this study, the Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS) technique was used to explore the methods to effectively assess the state of Li-ion ternary batteries. In this study, EIS tests were conducted on the battery under different SOC conditions, and the corresponding electrochemi-

cal impedance experiments were performed under overcharging, overdischarging, and internal short-circuit conditions, which led to the conclusion that the applicability of EIS for estimating various battery states and diagnosing battery faults was verified. In addition, as a complementary means to EIS, the relaxation time distribution method was used in this study to test batteries in different states, and the results were compared with the EIS tests to draw final conclusions.

## Keywords

Ternary Lithium Ion Battery, Electrochemical Impedance Spectroscopy, Relaxation Time Distribution

Copyright © 2024 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

随着全球能源危机的日益加剧和交通领域能源消耗对环境的污染，电动汽车因其节能、无噪音、零温室气体排放等特性而受到广泛欢迎。此外，锂离子电池因其能量密度高、自放电率低、使用寿命长等优点，在电动汽车中得到了广泛的应用。近二十年来，锂离子动力电池的容量估计得到了广泛的研究[1]。

由于锂离子合成电池的各种正负极合成材料及其具有的最大充放电操作容量、循环稳定操作性能及最高充放电容量倍率等主要的操作特性都与锂电极离子在合成嵌合物或锂电极合成材料过程中的离子释放、脱出及离子嵌入等操作过程中都有着紧密的操作联系[2]。把电池中的电极流形过程等同于电阻与电容串、并联所构成的简易电路，通过用来从设备电化学工作站输入电子扰动信号，得到电子扰动信号和输出信号，结合得到的电子扰动和输出信号可以作出等效电化学阻抗(Electrochemical Impedance Spectroscopy, EIS) [3]。使用较为小幅度的正弦波来对电极物质进行极化，扰动和体系之间的响应近似为线性相互作用，速度不同时这两个过程很容易有不同频率。因而 EIS 能比其他通常采用的电化学研究方法获取更多有效数据[4]。

当下，EIS 已然是对各种电化学过程研究(例如热和腐蚀)的强大科学用具[5]，尤其是近年以来，在各类的电化学科学技术体系实验中的使用率飙升，特别是在预测电池健康状态、荷电状态和判断电池是否内短路以及是否过充过放方面[6]。在实验研究中锂电池一般会被材料、电解液以及界面几何形状等因素所影响，但是 EIS 在这种较为复杂的条件下有很好的发挥空间，其原因主要有：1) 电化学阻抗谱测试的结果可以利用线性系统理论分析[7]；2) 电化学阻抗谱测试能够在复杂的环境下较为准确地反映各类电化学性能[4]；3) 电化学阻抗谱测试不会损害电池[8]。

在一般情况下，使用 EIS 研究锂电池状态的缺点如下：1) 实验中可能同时存在过多的物理与化学过程，导致了难以辨认目标。这主要可能是由于所需要使用的材料嵌入类型化合物颗粒电极通常都指的是由各种固体粘合剂、嵌入类型化合物电极颗粒和各种集成的流体所组合构成的多孔晶体复合材料电极，嵌入类型化合物颗粒电极的整体结构及其组成以及其使用制备各种电极时的涂层厚度与其使用制备电极方法和制作工艺等许多重要因素均很有可能会对其电极阻抗性的各种特点作用产生重要的影响[9]；2) 在测试过程中还经常出现测试结果不能重复的现象，这也是限制 EIS 方法应用的很关键因素[10]；3) 阻抗谱的测试所需要的一些硬件设施较为昂贵，所以并不支持广泛使用[11]；4) 温度对阻抗谱测试的影响极大，因此在测试过程中应该严格控制测试过程中的温度变化[12]。

目前, 锂离子电池频繁地出现在各种科技前沿的领域, 在使用过程中, 对于它们的工作状态进行实时性的检测和估计更是具有极其重要的意义[13]。虽然当下的检测设备技术与检测装置相比较之以往已经有了很多的进步, 但是由于检测装置的质量和成本太高, 所需要采集到的数据量极大、操作过程太复杂等诸多问题受到了限制, 先进准确的检测设备与技术很难被广泛应用到实际的工程中[14]。而在测试结果精度要求并不高的条件下, 对锂离子电池正常状态的检查和估计仍使用了比较落后的科学研究方法[15]。

对于这个问题, 本文拟定在一种锂离子电池电化学阻抗谱(EIS)检测技术的基础上[16], 研究其与荷电状态(State of Charge, SOC)、过充过放、内短路的关系, 并研究了以上三者与其各自弛豫时间分布的关系, 所以本文研究项目的开展具有一些理论和实际意义[17]。

## 2. 三元锂电池各个状态下不同交流阻抗谱的研究

### 2.1. 实验设计

#### 2.1.1. 交流阻抗谱实验设备

PGSTAT128N 型电化学工作站是一款优质的快速电化学综合测试仪[18], 其主要参数见表 1。

**Table 1.** Autolab PGSTAT128N test coverage

**表 1.** Autolab PGSTAT128N 测试范围

支持的电极体系	2、3、4 电极
扫描电位范围	$\pm 10$ A
最大输出电压	$\pm 10$ V
最大输出电流	$\pm 800$ mA
电流范围	10 nA~1 A
CV 扫描速率	0.1 $\mu$ V~250 V/s
取样频率	50 kHz
恒电位仪带宽	>500 kHz
控制软件	GPES/FRA/NOVA
电化学技术	支流技术、交流伏安、交流阻抗

#### 2.1.2. 交流阻抗谱实验操作

测试处理实验数据需要使用 NOVA 软件, 因不同实验中的交流阻抗谱测试在 NOVA 软件中具体步骤基本一致[19], 后以不同 SOC 下的交流阻抗谱测试为例讲解交流阻抗谱在 NOVA 软件中的实验操作[20]。

第一步: 设置一个测试初始电压的电压表用以和后续每一次循环的电压做对比。

第二步: 设置 SOC = 1 时的程序, 不进行放电, 静置 5 S 后进行第一次锂电池电化学阻抗谱测试, 测试时所测频率范围为 0.01 Hz~1 kHz, 其取点方式为频率每放大 10 倍时, 测试设备在其中取出 10 个点。

第三步: 将所测得的数据输出为 EXCEL 格式。

第四步: 在将电池静置 30 S 后以 1/3C (9.0705 A)恒流放电调整 SOC 至 0.9。

第五步: 在放电后再次循环一至四步直到 SOC = 0 时为止。其中采用的是恒流的放电方式, 且每次放电前要进行搁置是为了让电池内部达到平衡, 减小实验误差。

由于在实验中的测试范围为 0.01 Hz~1 kHz, 所以本文所测试的锂电池电化学阻抗谱主要有高频部分和中频部分以及一部分低频区域。

根据 MA 等人的研究[21], 以及在本文所作实验, 本文将所作的 EIS 图大致分为 3 部分, 如图 1 所示, 分为高、中、低频三个部分, 其中低频并不完全不能作为可靠的判断对象, 所以研究主要集中于探索高中频区域。

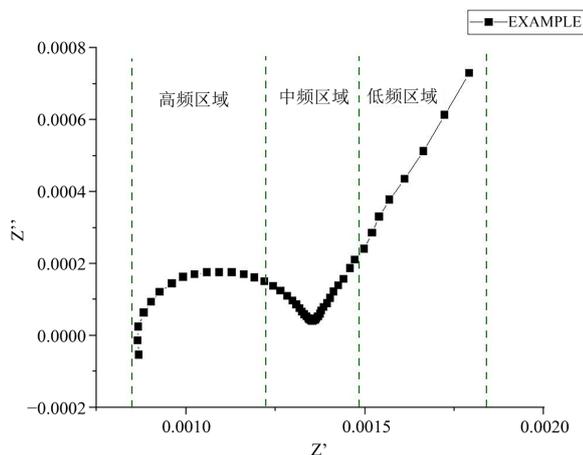


Figure 1. EIS example

图 1. 交流阻抗谱例子

## 2.2. EIS 随 SOC 变化分析

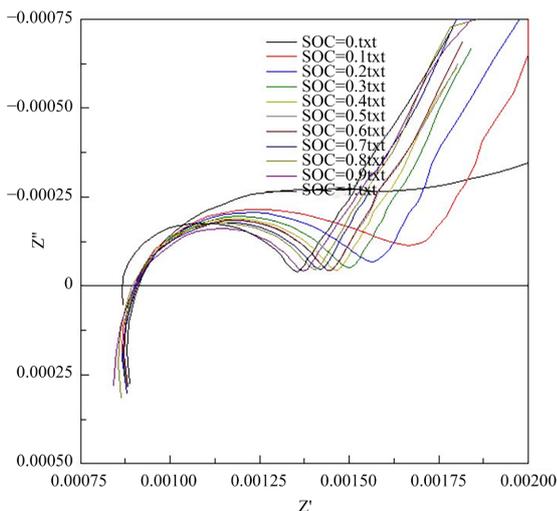


Figure 2. Comparison of EIS of different SOC

图 2. 不同 SOC 交流阻抗谱对比

根据 Schmidt 的研究[22], 电池在不同 SOC 情况下 EIS 也会随之变化。因此, 本节旨在通过实验具体研究电池在不同 SOC 情况下的电化学阻抗谱的不同, 并通过得到的电化学阻抗谱研究 EIS 估计电池 SOC 的方法。阻抗模型图谱中各个功率频段对电池阻抗的主要贡献都来源于不同功率频道的动力电池阻抗模型[16]。

锂电池 EIS 和 SOC 之间的关系随 SOC 发生变化 EIS 如图 2 所示, 锂电池不同 SOC 下的电化学阻抗谱阻抗在高频区域的重合程度高, 难以辨认。而在较低频率区域圆弧上则能够更好地将其与其进行区别。这一点验证了先前已经分析过的理论, 即表达为高频地区响应的蓄电池欧姆内阻并且不伴随 SOC 发生改

变,其数值基本保持不变;而用于表示低频地区响应的锂离子电池极化的电阻则会随 SOC 的增加而逐渐减少,表明了 SOC 单单只对位于中频处的电荷的转移过程有影响,而对于 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大。

根据这个主要特征可以分析得知,低频时各个电池的电源阻抗响应值和电池 SOC 之间的线性差异还是可能存在着比较明显的单调响应关系,那么通过对低频频段地域和时区的电池阻抗值和响应耦合作用分析来对各个 SOC 电池进行等效测试阻抗估计就具有一定的技术实施性和可行性。此类评估方式若最终能够有效实现,则其对动力电池工作状态进行评估的实际应用也将会因此变得极其有利。

## 2.3. 过充过放状态下 EIS 分析

### 2.3.1. 过充状态下的 EIS

锂电池 EIS 随在各个过充状态下发生变化的 EIS 如图 3 所示锂电池不同过充状态下的电化学阻抗谱在高频区域内重合程度低,可以广泛应用于区别,但是区分度不够明显。而在低频区域的圆弧处却可以被很容易地区分,但是区分度并不高。表示过充电池欧姆内阻随电池过充的程度而变化幅值不大;圆弧的半径可能会随着过充程度的加大而逐渐增大,这说明了随着过充程度的增高,锂电池电极的嵌锂程度越高,从而使得电荷的转移过程更为困难,而表征固体电解质膜(SEI)的半圆基本不随过放程度的变化而变化,表明了过充程度单单只对位于中频处的电荷的转移过程有影响,而对于 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大。

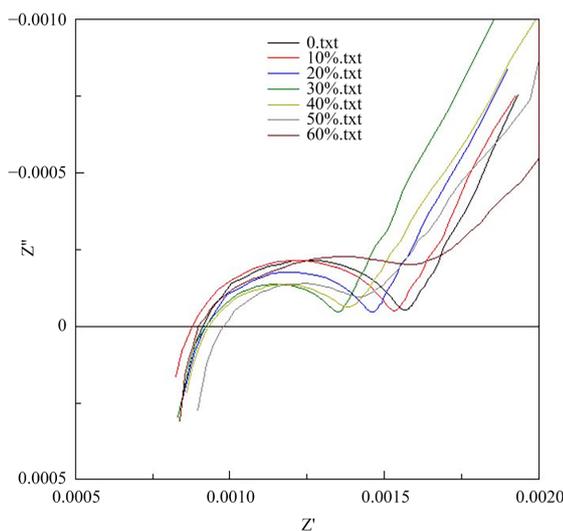


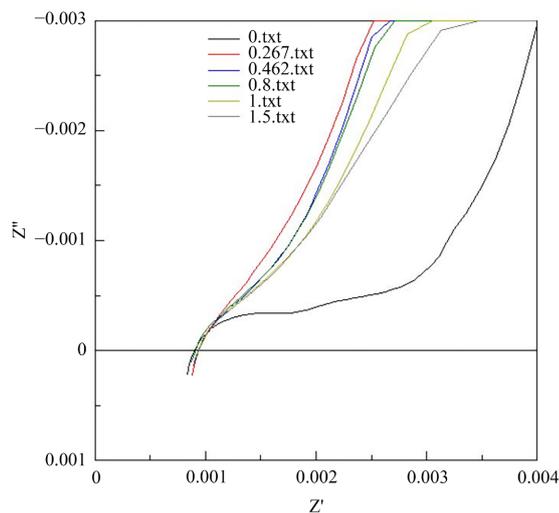
Figure 3. EIS in overcharged state

图 3. 过充状态下交流阻抗谱

### 2.3.2. 过放状态下的 EIS

锂电池 EIS 随在各个过放状态下发生变化的 EIS 如图 4 所示,锂电池不同过放状态下的电化学阻抗谱在其高频率区域中的重合程度相对比较高,更为难以辨别。而在锂电池不同过放状态下的电化学阻抗谱低频地带区域的圆弧点处却是能被很容易地区分,且区分度非常高,相对于未过放电池而言,过放锂电池的圆弧半径减小明显。表示高频区响应的电池欧姆内阻不随过放程度变化,数值基本不变;圆弧的半径会随着过放程度的增大而增大。这说明了随着过放程度的增高,锂电池电极的嵌锂程度越高,从而使得电荷的转移过程更为困难,而表征固体电解质膜(SEI)的半圆基本不随过放程度的变化而变化,表明了过放程度单单只对位于中频处的电荷的转移过程有影响,而对于 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大。

同时电池在过放状态下对 EIS 的影响剧烈, EIS 变化较为显著,所以可以使用 EIS 判断电池是否过放。



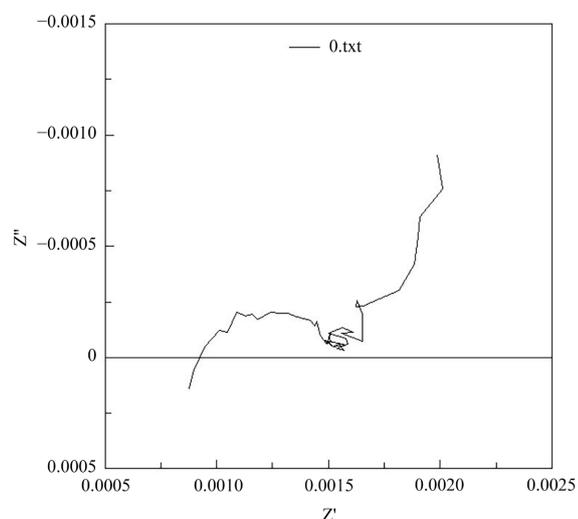
**Figure 4.** EIS in overdischarge state  
**图 4.** 过放状态下交流阻抗谱

基于以上过充过放实验可以判断出：过充过放对锂电池 EIS 的高频区影响不大，其主要影响对象是低频区的电池极化电阻，另一个方面来说表明了过放程度单单只对位于中频处的电荷的转移过程有影响，而对于 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大。

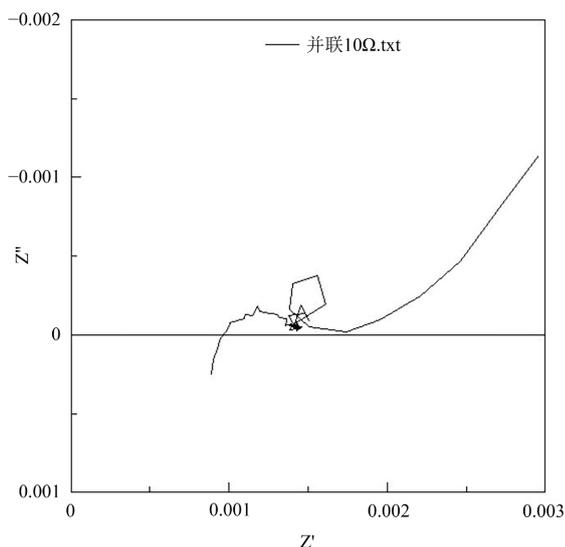
#### 2.4. 使用锂电池 EIS 判断内短路

本小节研究如何使用锂电池 EIS 判断内短路，在实验中使用了并联电阻造成内短路的方法模拟出了内短路状态下的锂电池。由于实验数据波动较大，为了清晰的展示实验结果，所以采用图 5、图 6、图 7 分别展示不同内短路状态下的锂电池 EIS。

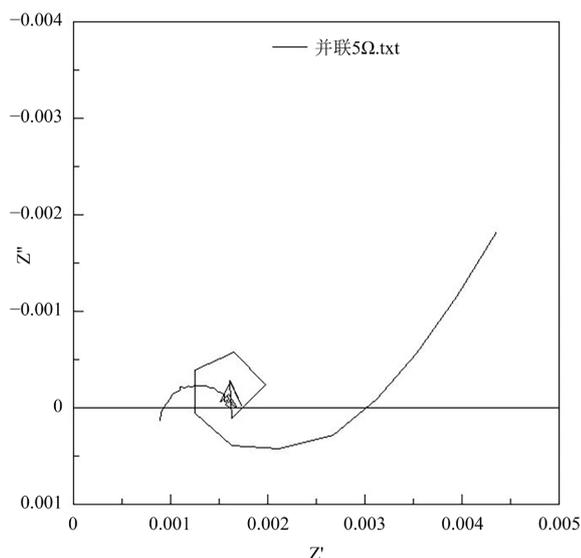
锂电池 EIS 在内短路状态下变化的 EIS 如图 5、图 6、图 7 所示，从图中可以了解到，内短路锂电池 EIS 在低频区圆弧处变化极大，圆弧会回转形成未封闭的圆，同时随着内短路的程度加剧圆弧的回转程度越强烈，所以可以使用 EIS 判断电池是否内短路。



**Figure 5.** Primary battery EIS  
**图 5.** 原电池交流阻抗谱



**Figure 6.** Internal short-circuit EIS with 10  $\Omega$  resistor in parallel  
**图 6.** 并联 10  $\Omega$  电阻的内短路电池交流阻抗谱



**Figure 7.** Internal short circuit EIS with 5  $\Omega$  resistor in parallel  
**图 7.** 并联 5  $\Omega$  电阻的内短路电池交流阻抗谱

### 3. 基于 DRT 的交流阻抗谱研究

#### 3.1. 弛豫时间分布的优势

在各类测试方法中, 电化学阻抗谱(EIS)可以区分呈现不同时间常数的物理化学过程[23]。因此, “电化学阻抗谱”被广泛用于电池老化分析[24]。然而, 因为它有重叠的问题, 即无数的电解加工可以拟合同一段电化学阻抗谱数据, 并且它没有将电解加工的电气元件与电池的物理化学参数联系起来。为了避免这些与电化学方法有关的问题, 弛豫时间分布(DRT)方法被用于电池分析。

作为等效电路法的补充, 弛豫时间分布(distribution of relaxation times, DRT)法具备以下两个明显优势: 一是不需要预先建模, DRT 法的核心思想是基于频域中离散的阻抗数据反演得到时域中连续的 DRT

函数，从而直接获取电池极化内阻在时间常数域内的分布，无需任何与电极反应相关的先验信息；二是 DRT 法可以有效地分离时间常数相近的电极反应过程，这些过程对应的几何特征在 EIS 的阻抗复平面图中往往由于互相重叠而难以识别，在采用等效电路法时，会导致不合理的建模和 EIS 解析[25]。

### 3.2. 锂电池基于 DRT 的交流阻抗谱实验

本章节利用弹性网正则化算法使用基于 MATLAB 平台的 DRTtools 软件得到锂电池弛豫时间分布数据。

#### 3.2.1. 不同 SOC 下的锂电池弛豫时间分布

根据 Zhou 的研究做出的弛豫时间分布分析[21],本文中弛豫时间分布分为如图 8 的 S1~S4 四部分,每个部分对应一个独立的极化过程。S1 归因于接触阻抗, S2 为锂离子通过 SEI 膜的阻抗, S3 为电荷交换阻抗; S4 为欧姆阻抗。

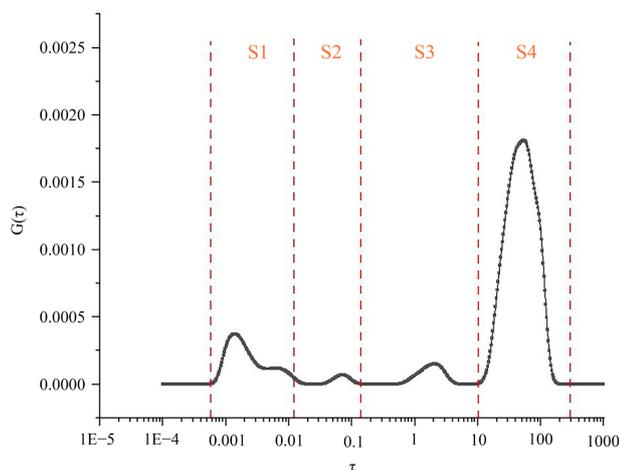


Figure 8. DRT distribution

图 8. 电池弛豫时间分布

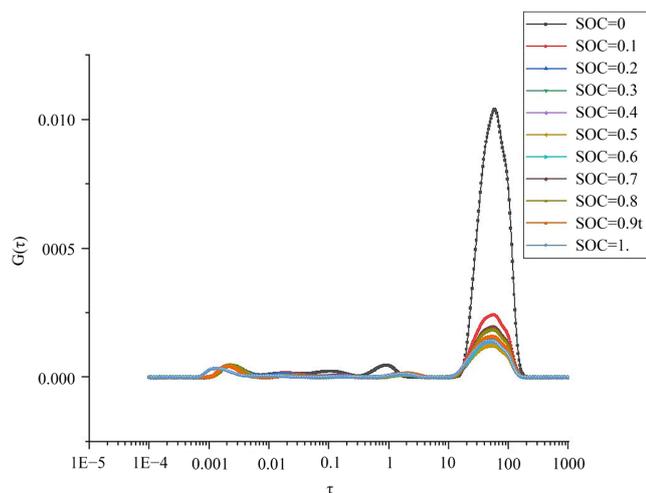


Figure 9. DRT with different SOC

图 9. 不同 SOC 下的弛豫时间分布

锂电池 DRT 随 SOC 变化的 EIS 如图 9 所示，从图中可以了解到，电池不同 SOC 下的弛豫时间分布在

S1、S2、S3 重合度高，区分较为困难。而在 S4 处却能较好的区分出来。S4 部分随着 SOC 的增大先迅速减小后逐步增大，且在 S1、S2 处变化不大，在 S3 处有变化，但是变化不剧烈，这说明锂电池不同 SOC 对接触电阻与对 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大，对电荷转移有影响，这与 1.3 中 SOC 变化对于 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大相吻合，同可以得出电池欧姆阻抗随着 SOC 的增大先迅速减小后逐步增大。

### 3.2.2. 过充过放下的锂电池弛豫时间分布

#### 1) 过充

锂电池在各过充状态下变化的弛豫时间分布如图 10 所示，电池不同过充状态下的弛豫时间分布中在 S1 部分随着过充状态的加剧而减小；在 S2 部分随着过充状态的加剧而减少；在 S3 部分随着过充状态的加剧而增加；在 S4 部分随着过充状态的加剧而增加，同时 S2、S3 部分的变化微弱，这说明，在活性物质与集流体和接触活性物质之间的接触阻抗在过充状态下会下降，但 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大，同时会使锂电池的欧姆阻抗增大。

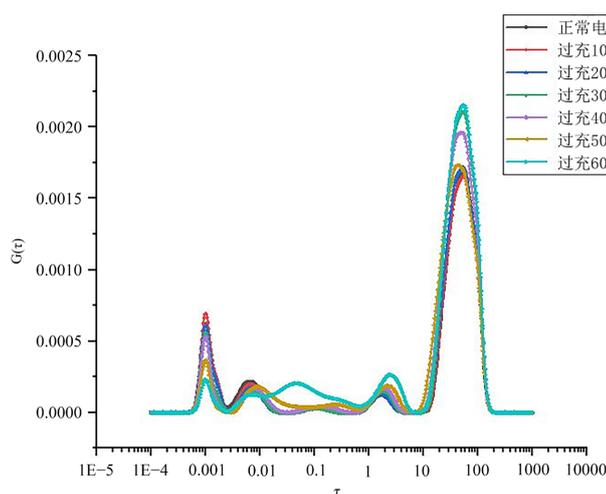


Figure 10. DRT for each overcharge state

图 10. 各过充状态下弛豫时间分布

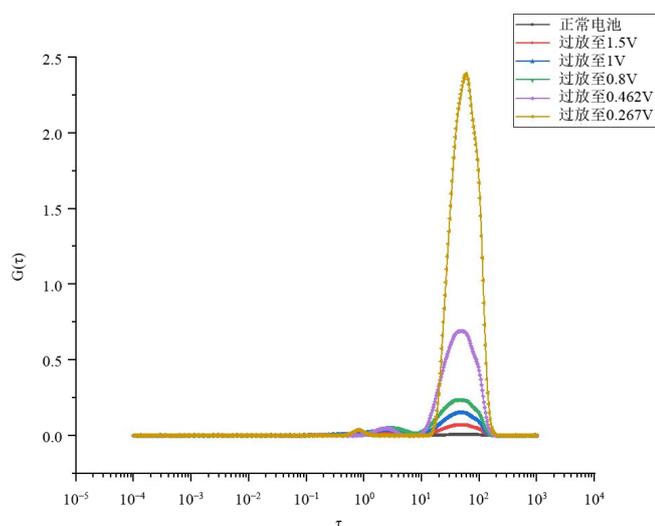


Figure 11. DRT for each overdischarge state

图 11. 各过放状态下弛豫时间分布

## 2) 过放

锂电池在各过放状态下变化的弛豫时间分布如图 11 所示, 锂电池不同过放状态下的弛豫时间分布中在 S1 S2 部分的变化微弱; 在 S3 部分有轻微变化; 在 S4 部分随着过放状态的加剧而减小, 同时相对于正常电池, 过放状态下的电池的 S4 急剧增大, 这说明, 过放状态下的锂电池的接触阻抗与对 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大, 对电荷转移过程稍有影响, 但过放状态会使锂电池的欧姆阻抗急剧增大, 同时过放程度越大欧姆阻抗越低。

### 3.2.3. 电池内短路下的锂电池弛豫时间分布

锂电池在各内短路状态下变化的弛豫时间分布如图 12 所示, 电池不同内短路状态下的弛豫时间分布中最显著的是在内短路状态下图像整体左移; 在 S1 S2 部分的变化微弱; 在 S3 部分有轻微变化; 在 S4 部分, 内短路程度低时减小, 内短路程度高时增大。这说明锂电池内短路对接触电阻与对 SEI 中锂离子的扩散过程影响不大, 但在内短路程度低时欧姆阻抗会降低, 在内短路程度高时欧姆阻抗会增加。

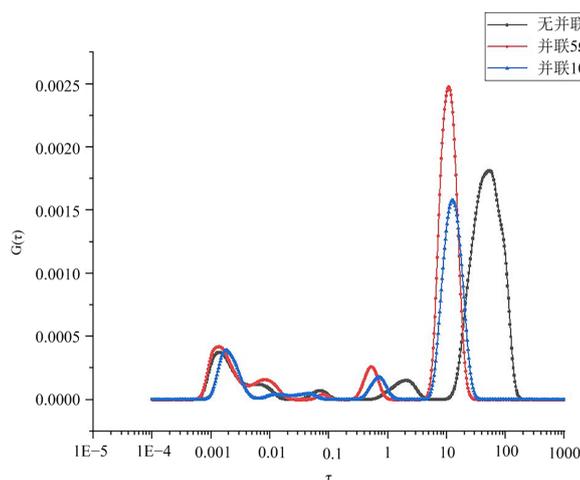


Figure 12. DRT under short circuit in Li-ion battery

图 12. 锂电池内短路下弛豫时间分布

## 4. 结论

本文介绍了三元锂电池电化学阻抗谱原理和实验设备; 弛豫时间分布的原理以及弛豫时间分布相对于 EIS 的优势, 同时简略叙述了弛豫时间分布的发展, 研究了三元锂电池单体的基本性能通过电池的容量特性试验、电池的开路电压特性实验获得了三元锂电池相应的基本性能参数, 并且先后进行了三种关于 EIS 的实验分别是不同 SOC 下的 EIS、过充过放下的 EIS、内短路状态下的 EIS 以及先后使用 DRT 处理了不同 SOC 下的 DRT、过充过放下的 DRT、内短路状态下的 DRT。结论为工程提供了一定实用意义。

## 参考文献

- [1] 田美娥. 电动车发展趋势[J]. 轻型汽车技术, 2010(11): 4-6.
- [2] 陈清泉, 孙立清. 电动汽车的现状和发展趋势[J]. 科技导报, 2005, 23(4): 24-28.
- [3] 张世超. 锂离子电池产业现状与研究开发热点[J]. 产业透视, 2004(1): 46-47.
- [4] 崔晓莉, 江志裕. 交流阻抗谱的表示及应用[J]. 上海师范大学学报: 自然科学版, 2001, 30(4): 53-54.
- [5] 宋永华, 阳岳希, 胡泽春. 电动汽车电池的现状及发展趋势[J]. 电网技术, 2011, 35(4): 1-7.
- [6] 黄曼, 陈昀. 水热法制备纳米片状氧化镍及其对葡萄糖的电化学检测[J]. 中国测试, 2016, 42(11): 44-47.

- [7] 李煜宇, 李真, 黄云辉. 电化学分析在新能源电池研究中的应用概述[J]. 分析科学学报, 2019, 35(6): 711-722.
- [8] 牛凯, 李静如, 李旭晨, 马晶, 刘燊, 李浩, 张文堤, 彭鹏, 陈杰威, 刘乐浩, 姜冰, 褚立华, 李美成. 电化学测试技术在锂离子电池中的应用研究[J]. 中国测试, 2020, 46(7): 90-101.
- [9] 曹楚南, 张鉴清. 电化学阻抗谱导论[M]. 北京: 科学出版社, 2002: 1-20.
- [10] Barsoukov, E. and Ross Macdonald, J. (2005) Appendix: Abbreviations and Definitions of Models. In: Barsoukov, E. and Ross Macdonald, J., Eds., *Impedance Spectroscopy: Theory, Experiment, and Applications*, Wiley, New York, 539. <https://doi.org/10.1002/0471716243.app1>
- [11] Thomas, M.G.S.R., et al. (1985) AC Impedance Analysis of Polycrystalline Insertion Electrodes: Application to  $\text{Li}_{1-x}\text{CoO}_2$ . *Journal of the Electrochemical Society*, **132**, 1521-1528. <https://doi.org/10.1149/1.2114158>
- [12] Barsoukov, E., et al. (2003) Comparison of Kinetic Properties of  $\text{LiCoO}_2$  and  $\text{LiTi}_{0.05}\text{Mg}_{0.05}\text{Ni}_{0.7}\text{Co}_{0.2}\text{O}_2$  by Impedance Spectroscopy. *Solid State Ionics*, **161**, 19-29. [https://doi.org/10.1016/S0167-2738\(03\)00150-4](https://doi.org/10.1016/S0167-2738(03)00150-4)
- [13] 马厚义, 吴晓娟, 李桂秋, 等. 电化学阻抗谱测试中的稳定性和线性问题[J]. 山东大学学报: 自然科学版, 2000, 35(1): 79-80.
- [14] 唐殊. 基于 EIS 的锂电池阻抗模型研究[D]: [硕士学位论文]. 成都: 电子科技大学, 2014.
- [15] 田晓辉. 锂离子电池 SOC 预测方法应用研究[D]: [硕士学位论文]. 洛阳: 河南科技大学, 2009: 5-6.
- [16] Nagasubramanian, G. (2001) Electrical Characteristics of 18650 Li-Ion Cells at Low Temperatures. *Journal of Applied Electrochemistry*, **31**, 99-104. <https://doi.org/10.1023/A:1004113825283>
- [17] Schichlein, H., Miller, A.C., Voigts, M., et al. (2002) Deconvolution of Electrochemical Impedance Spectra for the Identification of Electrode Reaction Mechanisms in Solid Oxide Fuel Cells. *Journal of Applied Electrochemistry*, **32**, 875-882. <https://doi.org/10.1023/A:1020599525160>
- [18] 王晟, 闫帅, 李浩秒, 王康丽, 蒋凯. 基于正则化方法的电池阻抗谱弛豫时间分布解析[J]. 中国电机工程学报, 2022, 42(9): 3177-3187. <https://doi.org/10.13334/j.0258.8013.pcsee.201844>
- [19] 王佳, 黄秋安, 李伟恒, 王娟, 庄全超, 张久俊. 电化学阻抗谱弛豫时间分布基础[J]. 电化学, 2020, 26(5): 607-627.
- [20] Li, X., Ahmadi, M., Collins, L., et al. (2019) Deconvolving Distribution of Relaxation Times, Resistances and Inductance from Electrochemical Impedance Spectroscopy via Statistical Model Selection: Exploiting Structural-Sparsity Regularization and Data-Driven Parameter Tuning. *Electrochimica Acta*, **313**, 570-583.
- [21] Zhou, X., Huang, J., Pan, Z.Q. and Ouyang, M.G. (2019) Impedance Characterization of Lithium-Ion Batteries Aging under High Temperature Cycling: Importance of Electrolyte-Phase Diffusion. *Journal of Power Sources*, **426**, 216-222. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2019.04.040>
- [22] Huang, J., Li, Z., Liaw, B.Y. and Zhang, J. (2016) Graphical Analysis of Electrochemical Impedance Spectroscopy Data in Bode and Nyquist Representations. *Journal of Power Sources*, **309**, 82-98. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2016.01.073>
- [23] Endler, C., Lconide, A., Weber, A., et al. (2010) Time-Dependent Electrode Performance Changes in Intermediate Temperature Solid Oxide Fuel Cells. *Journal of the Electrochemical Society*, **157**, B292-B298. <https://doi.org/10.1149/1.3270047>
- [24] Schmidt, J.P., Chrobak, T., Ender, M., et al. (2011) Studies on  $\text{LiFePO}_4$  as Cathode Material Using Impedance Spectroscopy. *Journal of Power Source*, **196**, 5342-5348. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2010.09.121>
- [25] Schmidt, J.P., Berg, P., Schinleber, M., et al. (2013) The Distribution of Relaxation Times as Basis for Generalized Time-Domain Models for Li-Ion Batteries. *Journal of Power Source*, **221**, 70-77. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2012.07.100>