

信州大学審査学位論文

直接メタノール形燃料電池  
電源制御システムの開発

2011年9月

乗松 泰明

## 要旨

直接メタノール形燃料電池 (DMFC: Direct Methanol Fuel Cell) は特にモバイル用途の新しい高密度電源として期待されている。しかしながら、エネルギー密度の高さとは逆に出力密度の低さが課題となっている。同じ出力を得る場合、DMFC 体積は従来の二次電池よりもはるかに大きいのが実情である。加えて、DMFC は周囲環境などによって出力が変化するため、電力不足発生時の補償方法も課題である。

そこで、携帯機器用充電器向けに小型でかつ供給電力不足が発生しないシステムとして、DMFC と電気二重層キャパシタ (EDLC: Electric Double Layer Capacitor) のハイブリッド制御システムであるパルスチャージ制御システムを提案した。パルスチャージ制御システムは DMFC と EDLC を使ったハイブリッド構成となっており、DMFC の出力設計は携帯電話の平均電力相当にすることで発電部を小型化する。携帯電話のピーク電力に対する不足分は、出力密度に優れた EDLC により補完することで、常に携帯電話要求電力以上を保証する。パルスチャージ制御は、DMFC から出力される電荷を EDLC に充電し、負荷に供給可能な電荷量になった時点で一気に放電するという、2つのモードを繰り返す間欠型電源制御である。

無論このような動作では、負荷に必要な安定した電気エネルギーを供給することはできず、負荷側に二次電池を有し、その二次電池とハイブリッド構成を採ることが前提となる。しかし、本方式により、既存の AC アダプタとインタフェースの互換性を有しつつ、二次電池を充電するために必要な DMFC 体積を低減できる。また、DMFC の出力が変動しても、無理なくエネルギーの供給が可能となり、燃料供給のみでシステムの駆動が可能となる。さらに、EDLC の適用がその他の蓄電デバイスの適用よりも小型化の面で有利となることも示した。結果、パルスチャージ制御の適用により、充電器体積は適用しない場合の約 34 % を実現した。

また、携帯機器に使用できる DMFC の小型化を実現するために、ファンやポンプを使用しないパッシブ型 DMFC を本研究の対象としており、さらにパルスチャージ制御システムを適用することで、電源の小型化の面で有利となるが、トレードオフとして放熱が不利となる。そこで本稿では、DMFC の温度特性と最大電力との関係に着目し、DMFC 電圧のみで出力電力と発熱が制御可能であることを新たに見出した。本温度制御方式は、ファンを用いないパッシブ方式であり、携帯機器用の燃料電池に広く採用されている空気極パッシブ方式への適用が可能となる。さらに、パルスチャージ制御システムへ適用した温度制御電圧テーブルも示し、実験により 45 °C 以下への温度制限ができていたことも確認できた。

パルスチャージ制御システムでは、DMFC と EDLC の並列構成となっており、DMFC と EDLC の電圧が常に同電位となって動作する。この並列接続構成における課題は、EDLC への印加電圧の制御である。DMFC は開路電圧 (OCV : Open Circuit Voltage) が、通常使用電圧の 1.5 倍以上と既存の二次電池と比較して変動が大きい特性となっており、EDLC 保護のために EDLC 耐圧以下へ DMFC 電圧をクランプする必要がある。そこで本稿では、従来から DMFC の特性を示すのに使われている電圧-電流特性の測定方法が静特性の評価である点に着目し、DMFC 電圧の負荷低減時の動特性の評価が必要であることを新たに提案した。検討の結果、負荷急減時に DMFC セル電圧が静特性の電圧値を超えて上昇する現象を新たに把握することができた。そして、本特性を解決する OCV クランプ方式を提案し、これに耐え得る低損失な OCV クランプ回路を設計した。

最後に、DMFC をより高密度電源とすることを目的とした出力電力量増加制御について検討した。パッシブ型 DMFC の発電効率は使用電圧と理論電圧の比で決まることを見出したが、使用電圧を上昇した場合の出力低下を考慮する必要がある。そこで、本稿では、温度制御方式を拡張し、DMFC 温度の上昇制御と DMFC 電圧による DMFC 出力効率の制御を特徴とする出力電力量増加制御方式を提案した。比較実験の結果、電圧と温度の両方の制御の効果を確認でき、定電流制御に対して電圧制御のみで 1.30 倍、電圧と温度の両方の制御で 1.41 倍の出力電力増加が確認できた。また、理論値からの算出結果と実験結果との効果の差が 1 % 以下と小さく、狙いとした制御の妥当性も確認することができた。本報告に述べる出力電力量増加制御システムの新制御は、高密度化が要求される DMFC の出力効率増加という、実用化に不可欠な技術である。

# 目次

<b>第1章</b>	<b>緒言</b>	<b>6</b>
1.1	DMFC (Direct Methanol Fuel Cell) の開発経緯	7
1.2	(株) 日立製作所における DMFC の開発経緯	11
<b>第2章</b>	<b>DMFC システム</b>	<b>17</b>
2.1	DMFC システムの課題	18
2.1.1	DMFC システムの要素技術	20
<b>第3章</b>	<b>電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池制御システムの開発</b>	<b>26</b>
3.1	まえがき	27
3.2	二次電池と DMFC の特徴の相違	29
3.3	充電器型 DMFC 電源の検討	31
3.4	パルスチャージ制御システムの提案	35
3.5	パルスチャージ制御システム用 EDLC	39
3.6	パルスチャージ制御システム適用結果	41
3.7	まとめ	44
<b>第4章</b>	<b>電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向けパッシブ温度制御システムの開発</b>	<b>47</b>
4.1	まえがき	48
4.2	DMFC の温度特性と最大電力点の関係	50
4.3	パルスチャージ制御システム用パッシブ DMFC 温度制御方式の検討	53
4.4	パルスチャージ制御システムへのパッシブ温度制御適用結果	58
4.5	まとめ	60
<b>第5章</b>	<b>電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池の動特性評価方式の提案および保護方式の開発</b>	<b>63</b>
5.1	まえがき	64
5.2	DMFC 静特性と EDLC 耐圧の関係	65
5.3	DMFC 動特性の特性評価実験および結果	67
5.4	パルスチャージ制御システムへの OCV クランプ方式の適用	71
5.5	まとめ	74

<b>第6章</b>	<b>電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向け出力電 力量増加制御方式の開発</b>	<b>77</b>
6.1	まえがき	78
6.2	パルスチャージ制御システムとその課題	79
6.3	DMFC 高効率制御による出力電力量増加制御の検討	83
6.4	実験および考察	86
6.4.1	実験条件	86
6.4.2	定温・定電流制御の実験	87
6.4.3	定温・出力電力量増加制御の実験	88
6.4.4	出力電力量増加制御の効果	89
6.4.5	変温・出力電力量増加制御の実験	91
6.4.6	DMFC 変温の場合の効果	92
6.5	結果の比較および考察	93
6.6	まとめ	95
<b>第7章</b>	<b>結言および本研究の社会的貢献</b>	<b>98</b>
<b>第8章</b>	<b>本研究に関する業績</b>	<b>101</b>
<b>第9章</b>	<b>謝辞</b>	<b>103</b>

## 記号および略号

- DMFC：直接メタノール形燃料電池 (Direct Methanol Fuel Cell)
- LIB：リチウムイオン二次電池 (Lithium Ion secondary Battery)
- IEC：国際電気標準会議 (International Electrotechnical Commission)
- PEFC：固体高分子形燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell)
- MEA：膜電極接合体 (Membrane Electrode Assembly)
- OCV：開路電圧 (Open Circuit Voltage)
- EDLC：電気二重層キャパシタ (Electric Double Layer Capacitor)
- ESR：等価直列抵抗 (Equivalent Series Resistance)

# 第1章 緒言

## 1.1 DMFC (Direct Methanol Fuel Cell) の開発経緯

近年、携帯機器市場が拡大しており、携帯機器用電池も Ni 系 2 次電池から Li 系 2 次電池へ移行し、より高エネルギー密度の電源を求める傾向になっている。しかしながら、Li 系 2 次電池の高容量化の伸びにも限界が見え始めた上に、長時間駆動を実現するにつれて充電時間の長さも問題となってきた。

以上に挙げた課題を解決する次世代のモバイル機器向けエネルギー源として燃料電池が注目を集めている。このような燃料電池は、マイクロ燃料電池と呼ばれ、IEC(International Electrotechnical Commission) [1] の燃料電池の規格では、「ウェアラブルもしくは簡単に持ち運べる 60V 以下、240W 以下の DC 電源」と定義される。

一般的に知られている燃料電池は、水素を燃料とした固体高分子形燃料電池 (PEFC) である。数百  $\text{mW}/\text{cm}^2$  と十分な出力が得られるのが利点であるが、電解質膜の乾燥に弱く、システム的な対策が必要とされる。また、水素は気体であるため、燃料供給を行うシステム制御が必要となる他に、燃料カートリッジとしての持ち運びの問題が有る。高圧ボンベや水素吸蔵合金を使用したカートリッジが考えられるが、モバイル機器に使用可能となる安価で軽量なカートリッジの開発は難しい。

したがって、液体燃料を使用した燃料電池が、モバイル機器アプリケーションとした場合に必須となる携帯性に優れていると考えられている。燃料電池に使用可能な液体燃料としては、メタノール、エタノール、液化ブタン、蟻酸等があるが、燃料電池出力が高く、燃料の単位エネルギー密度の高いメタノールを使用した燃料電池が有望である。また、これら液体燃料を水素に改質して使用する改質型メタノール燃料電池もあり、水素型同様高出力が得られるのが利点であるが、先に述べた燃料供給制御システムが必要となるのに加えて、液体燃料から水素に改質する改質器も必要となる。改質器の温度は  $300\text{ }^\circ\text{C}$  近くとなるため、近年発熱の問題が大きくなってきているモバイル機器への搭載は難しい [2]。

したがって、触媒でメタノールから直接発電可能な直接メタノール形燃料電池 (DMFC) がモバイル機器用の燃料電池として期待されている。システムの簡易さやモバイル機器との熱的な適合性の高さが利点として挙げられるため、国内外の多くの企業や研究機関で開発されている。反面、出力密度が数十  $\text{mW}/\text{cm}^2$  程度と低く、電解質をメタノールが透過するクロスオーバー現象による出力、寿命、エネルギーの浪費が材料的な課題となっており、高濃度メタノールを使用することが難しいため、各社対策が検討されている。

燃料の供給関係も、(株) 日立製作所では着火しない低濃度のカートリッジを開発しており、(株) 東芝は 100wt % に近い高濃度メタノールのカートリッジを開発している。

モバイル機器用のマイクロ燃料電池は、特に (株) カシオ計算機が 2002 年 3 月



に小型改質型燃料電池のコンセプトモデルを発表 [3] [4] したのを契機に (株) 日立製作所 [5], (株) 東芝 [6] [7], (株) NEC [8] もノート P C に搭載した試作品を発表するなど実用化への期待が大きく膨らんだ。DMFC は特に重量エネルギー密度に優れ、携帯機器用電源としての適合性が高く、燃料がある限り発電を継続でき、燃料を補給することにより充電時間もゼロにできる。

以上の経緯から、ノート PC をアプリケーションとした燃料電池の開発が 2002 年を中心に各社スタートした。ノート PC 向け充電器型燃料電池が 2001 年から 2005 年、ノート PC 内蔵型燃料電池が 2001 年から 2006 年にかけて各社から発表されていたが、2001 年当初は 1 日使用可能となる 8 時間以上駆動タイプで約 2kg だったノート PC も [9], 2004 年には 1kg 以下となったことから [10] 開発が下火となったと思われる。駆動時間延長の要因として、リチウムイオン二次電池 (LIB) の高エネルギー密度化とノート PC の CPU やチップセット等の半導体を中心とした省電力化が挙げられる。LIB のエネルギー密度はほぼ頭打ちとなっているが、半導体は省電力半導体である Atom を搭載したネットブックが近年話題となる等、省電力化の開発が継続しており、1 日使用可能なノート PC は現在では当り前の技術となったといえよう。

一方、携帯機器の代表として携帯電話が挙げられるが、現在、特に電源不足が問題となっている。携帯電話は本来の機能である無線電話機能だけではなく、電子メール、カメラ機能、着信音の高音質化等の付加機能を搭載してユーザーズを満たすことにより、ユーザの買い替え需要を喚起して出荷台数を伸ばしてきた。2003 年度の携帯電話の国内販売台数は 1335 万台と言われており、ノート P C の国内販売台数 138 万台の約 10 倍となっている [11]。また、IDC [12] によると 2004 年の世界の出荷台数は 5 億 9500 万台、2008 年には 8 億台に達すると予測されており、今後も順調な伸びが期待されている。このような携帯電話に近年追加された機能として T V 機能があり、2007 年には地上波デジタル T V への対応が計画されている。しかしながら、T V 機能を使用した場合の駆動時間は現状では連続 90 分程度と短い。これまで同様の通話時間を確保した上で T V 機能を使用できるようにするには現在の 2 倍以上の電池容量が必要となるため、現在の Li 電池の容量を年率 10 % で増加させても不十分である [11]。

以上のように、メインバッテリーの容量を大きく増加できないのが携帯電話の課題となっているが、携帯電話の駆動時間延長の解決策として、今後、充電が 1 つのキーワードとなると考えられる。このような充電技術は、大きく分けて以下 2 つの方向が挙げられる。

- LIB の充電受入性向上による急速充電
- LIB 以外の電源を付加した長時間充電

まず、急速充電の実現性について述べる。現状携帯電話に使われている約 800mAh の LIB を 3 分以内で 80 % 程度の充電することを想定すると、LIB に 20C 以上の充

電をする必要があり、このときの充電電流は 16A 以上となる。小型コネクタの接触抵抗は最大 100m Ω であることから、+と-の 2 端子において、 $100\text{m } \Omega \times 2 \times 16\text{A}^2 = 51.2\text{W}$  の発熱が急速充電時に生じることとなる。充電端子を多端子とすることによる低減も考えられるが現実的ではない。

さらに、近年携帯電話の端子に直接繋がなくても、上に置くだけで充電ができるワイヤレス充電器も販売されている [13]。Wireless Power Consortium が策定したワイヤレス給電に関する国際標準規格「Qi (チー)」に準拠した充電器が計画されており、このことから急速充電可能な端子の要望は今後小さくなる方向であると考えられる。

一方、その他電源による長時間充電であるが、1 つには燃料補給のみで充電できる燃料電池が考えられている。また、最近太陽電池を携帯電話に搭載したモデルも (株) シャープ等から発売されている [14]。従来、災害用の携帯電話向け充電器として太陽電池を使用したものはあったが、一般モデルで太陽電池を搭載していることから、その他電源による長時間充電の方が実現性と利用者の要望が高いことが分かる。

以上のように電池容量の増加が求められる携帯電話の次世代電源として、DMFC が注目を集めている。2004 年 7 月に (株) KDDI が (株) 日立製作所、(株) 東芝とそれぞれ携帯電話用燃料電池電源の共同開発することを発表した [15]。2004 年度は図 1.1 に示すような携帯電話外付け充電器型、2005 年度は携帯電話内蔵型で開発した。



図 1.1: (株) 日立製作所 DMFC 充電器

また、(株) NTT ドコモも 2004 年 9 月に (株) 富士通研究所と開発した試作機を発表 [16] するなど各社の開発競争が激化した。

2006 年 7 月には、DMFC 以外の携帯電話向け燃料電池として (株) NTT ドコモとアクアフェアリー (株) が開発した水素型の外付け充電器を発表 [16]、海外ではボロハイドライドを燃料とする使い捨て式の外付け充電器を Medis Technologies Ltd. が開発する等、ノート PC よりも低出力をターゲットとした燃料電池に各社の開発が集中している。

## 1.2 (株) 日立製作所における DMFC の開発経緯

(株) 日立製作所では、2000 年以前はポータブル電源、車載用電源を対象機器として研究開発が行われている。

世の中の DMFC への期待感が高まったことを背景に、2002 年からノート PC や PDA を対象とした高出力のアクティブ型 DMFC システムを開発のスタートとしている。

その後、ファンやポンプを使用しないパッシブ型 DMFC の開発を開始し、特に愛知万博では図 1.2 のような日立館プレビューショーで 14 時間以上使用する端末である Nature Viewer 向けに DMFC 電源を開発して約半年間のフィールド試験を実施した。



図 1.2: Nature Viewer

また、14時間以上の連続駆動を実現するためには、容易に燃料補給を実現するカートリッジが必要となるが、愛知万博に先駆けて2003年12月に（株）東海とDMFC用カートリッジの共同開発を開始している [18]。

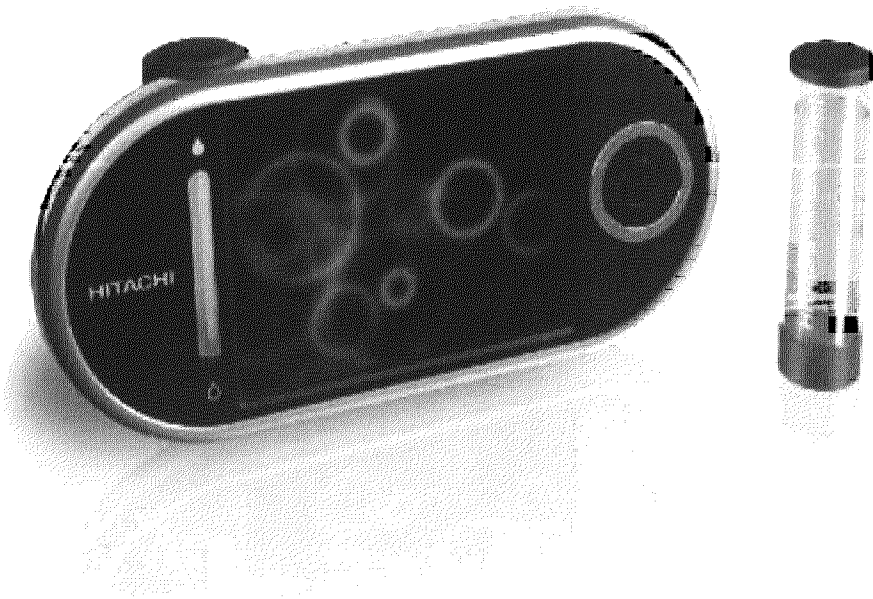


図 1.3: 開発カートリッジイメージ

愛知万博と同時に、2004年7月には（株）KDDIと（株）日立製作所が携帯電話用燃料電池電源を共同開発することを発表した。同時に（株）東芝も（株）KDDIとの同様な開発を発表し、2004年度は図1.4の外付け充電器型DMFCを開発した。

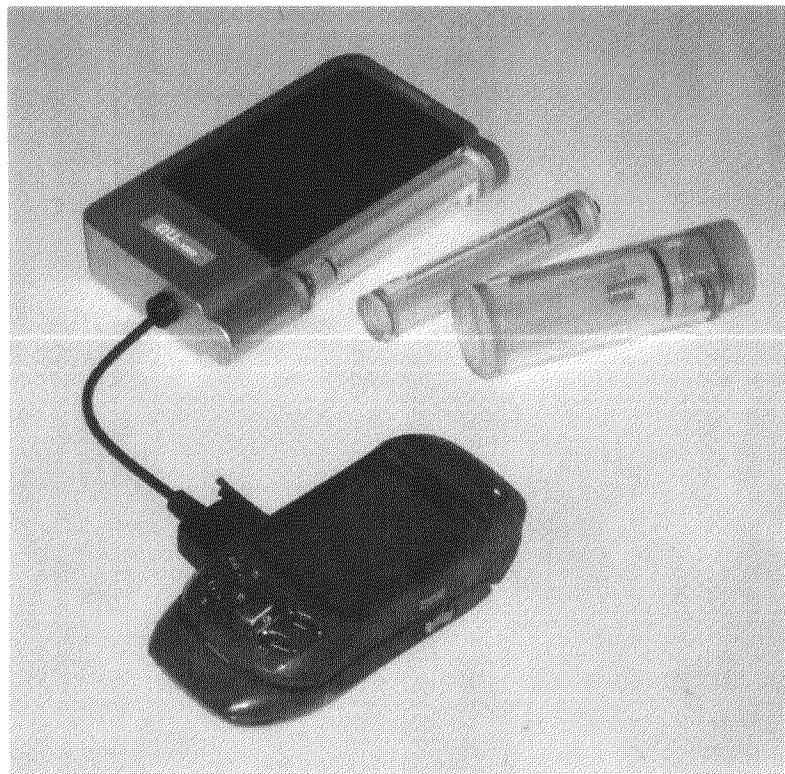


図 1.4: 開発 DMFC 充電器

この開発結果を受け、2005年度はさらに難易度の高い携帯電話本体への内蔵型燃料電池電源を開発した。燃料補給用カートリッジは、図 1.5 のようにペン型のカートリッジを試作している。



図 1.5: 開発内蔵型 DMFC

本報告では、2004年度の開発結果を改良した外付け充電器型DMFC制御システムと制御方法の詳細について述べる。

## 参考文献

- [1] IEC ウェブサイト (<http://www.iec.ch/>)
- [2] 越前谷 三夫, ” 携帯電話における発熱事例・熱対策と今後の動向, ” 熱設計・対策技術シンポジウム 2005, no.G3-1, pp.5, Apr.2005.
- [3] カシオ計算機 ニュースリリース (<http://www.casio.co.jp/release/fuelcell.html>)
- [4] 塩谷 雅治: CASIO におけるマイクロ燃料電池の開発, 燃料電池, Vol.2,2002
- [5] 日立製作所ニュースリリース (<http://www.hitachi.co.jp/New/cnews/031210.html>)
- [6] 東芝 ニュースリリース ([http://www.toshiba.co.jp/about/press/2003\\_03/pr\\_i0501.html](http://www.toshiba.co.jp/about/press/2003_03/pr_i0501.html))
- [7] 大関 秀行: 東芝におけるマイクロ燃料電池の開発状況, 燃料電池, Vol.2,2002
- [8] N E C ニュースリリース (<http://www.nec.co.jp/press/ja/0306/3002.html>)
- [9] Lenovo ウェブサイト (<http://www-06.ibm.com/jp/domino04/pc/support/Sylphd13.nsf/jtechinfo/SYP0-02084D4>)
- [10] Panasonic ウェブサイト (<http://ctlg.panasonic.jp/product/info.do?pg=04&hb=CF-R3DW1AXR>)
- [11] 狩集 浩志, 蓮田 宏樹: 「燃料電池の明日」, 「日経エレクトロニクス」, 2004 年 12 月, no888, pp107-108
- [12] IDC ウェブサイト (<http://idc.com/>)
- [13] NTT ドコモワイヤレスチャージャーオプション品  
(<http://www.nttdocomo.co.jp/product/option/about/>)
- [14] シャープ携帯電話資料 (<http://www.sharp.co.jp/products/sh007/>)
- [15] KDDI ニュースリリース ([http://www.kddi.com/corporate/news\\_release/2004/0714b/](http://www.kddi.com/corporate/news_release/2004/0714b/))
- [16] NTT ドコモニュースリリース  
(<http://www.nttdocomo.co.jp/new/contents/04/whatnew0930.html>)



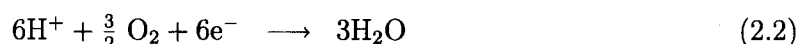
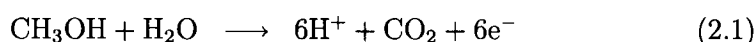
- [17] NTT ドコモ報道発表資料  
([http://www.nttdocomo.co.jp/info/news\\_release/page/20060714a.html](http://www.nttdocomo.co.jp/info/news_release/page/20060714a.html))
- [18] 日立製作所ニュースリリース (<http://www.hitachi.co.jp/New/cnews/031210a.html>)

## 第2章 DMFCシステム

## 2.1 DMFCシステムの課題

まずDMFCの動作原理を説明する。

DMFCは従来の2次電池のように電子のやりとりのみをする物質的に閉鎖系のシステムとは異なり、燃料を継ぎ足すことで動作を継続可能な開放系のシステムである。DMFCの化学反応式を以下に示す。なお、(2.1)の反応が起こる方を燃料極(アノード)、(2.2)の反応が起こる方を空気極(カソード)と呼ぶ。電気的には燃料極が負極、空気極が正極である。



また、(2.1)(2.2)の化学反応式に示す通り燃料には水とメタノールが等モル必要である。このようなメタノール水溶液の最大濃度を計算すると64wt%となるが、高濃度になるとメタノールがアノードからカソードへ通り抜けカソードで反応して出力が低下するメタノールクロスオーバーと呼ばれる現象が起こる。そのため現状の一般に使用されるメタノール水溶液濃度は20~30wt%程度となっており、エネルギー密度向上のためにメタノールクロスオーバーを低減して高濃度メタノール水溶液を使用可能な材料開発が課題となっている[1]。クロスオーバーが大きくなると燃料電池出力が低下する[2]他、カソードで酸化されることで発熱が増加するという問題がある。

他の燃料電池同様、水を排出するため、この生成水の除去も問題とされている[3]。高出力のアプリケーションの場合は、除去もしくは回収システムが必要となり、低出力の場合は、凝固しないよう拡散させる機構が必要となる。また、生成水の量は(2.1)(2.2)の化学反応式に示す通り、電流量に比例するため、電源回路において電力制限制御を行う検討も必要と考えられる。

DMFC特有の排出物として、二酸化炭素が燃料中に生じるため、二酸化炭素のみ排出して燃料を排出しない気液分離機構も必要となる。気液分離による排出がスムーズに働かない場合、二酸化炭素によってアノード側の内圧が上昇するため、発電を阻害するだけでなく、電解質膜の破れやシールの破れ等による液漏れの危険性も高まる。

さらに、電源制御の課題としてDMFCは燃料が無いスタート状態では発電していないため、制御用の電源が得られない。そのため第1の問題はスタートをどうするか、つまり使用者の力学的な操作を利用するか、その他の二次電池をハイブリッドとして備えることでシステム側でスタート可能な状態とするかという問題がある。第2の問題は、起動後の出力保証の問題である。つまり、DMFC単独で保証するか、ハイブリッド構成とすることで保証するかという2つの解決策がある。DMFCは出力密度が低いため、ハイブリッド構成とするのが一般的であるが、

どのデバイスをハイブリッドとし、充放電制御するかという検討も必要と考えられる。

また、液体燃料を使用しているため、物理的な方向性フリーの問題も懸念されており [3]、燃料供給の障害、燃料や水漏れなどの問題がない構造を検討する必要がある。

### 2.1.1 DMFCシステムの要素技術

以上に述べた他に、実際に発電を行う膜電極接合体 (MEA) を格納した電池本体のみでは動作せず、物質の移動を行う周辺技術が必須であり、図 2.1 の構成が必要であると考えられる。以下で各要素技術について簡単に紹介する。

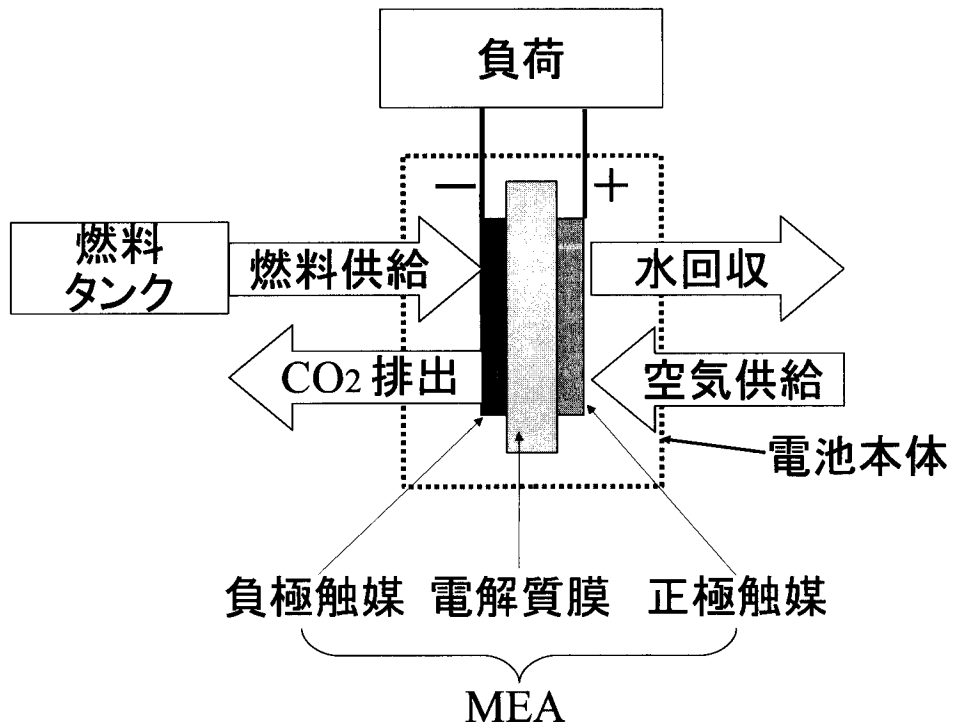


図 2.1: DMFC 既存システム構成

- MEA

プロトンを移動させる電解質膜，白金を使用する正極触媒，白金とルテニウムを使用する負極触媒からなる。実際に電池としてアセンブリするためには，アノードとカソードそれぞれにカーボンペーパーなどの拡散層を置き，電氣的に接続するための集電板 (Ti や SUS 等) で挟み，その周囲にはケースや液洩れ防止のためのガスケット等を備えた構造となる。

- 燃料タンク

燃料を実際に貯めておく部位。ここで燃料タンクは耐久性があり，燃料を補充するなど複数回使えるものを想定している。燃料タンクまたは切り離し可能な燃料カートリッジを取り付けた状態で使用することも考えられるが，現在携帯機器用には，小型化のために補充時のみ接続する燃料カートリッジを検討中である。燃料を圧力カートリッジで封入するため，方向性の問題は解決できる方式である。

- 燃料供給

発電に必要な燃料を DMFC の燃料極 (アノード) に供給するための流路，ポンプ，吸い上げ材，内部タンクがこれにあたる。先に述べた燃料カートリッジで燃料を補充する場合は，駆動時間に相当する燃料をアノード周辺にためる必要がある。

- CO<sub>2</sub> 排出

発電反応により生じる CO<sub>2</sub> を大気中に放出する機構。気液分離膜などの適用を検討中である。方向性に関わらず CO<sub>2</sub> 排出が求められるため，方向性の問題を解決するために重要な技術となる。

- 空気供給

発電に必要な空気 (酸素) を DMFC の空気極 (カソード) に供給するための流路構造やファン，ブロー等の補機が挙げられる。

- 水回収

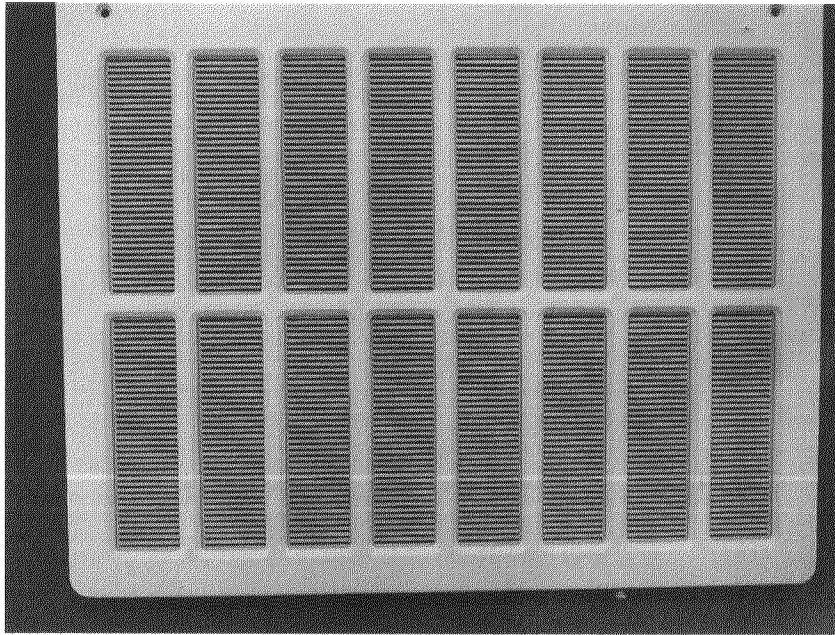
発電により生じる水を処理する機構。前章で述べたように，高出力のアプリケーションの場合は，除去もしくは回収システムが必要となり，低出力の場合は，凝固しないよう拡散させる機構が必要となる。

なお，上記空気極への空気供給に補機を使わずに自然拡散させるタイプを自然呼吸型，ファン，ブロー，空気ポンプのような補機を使って空気極へ空気を送り込むタイプを強制吸気型と呼ぶ。また，空気極は自然呼吸型であるが，燃料極側はポンプを使用しているものもあり，大きく補機を使用しているものをアクティブ型，全く補機を使用していないものをパッシブ型と呼ぶ。

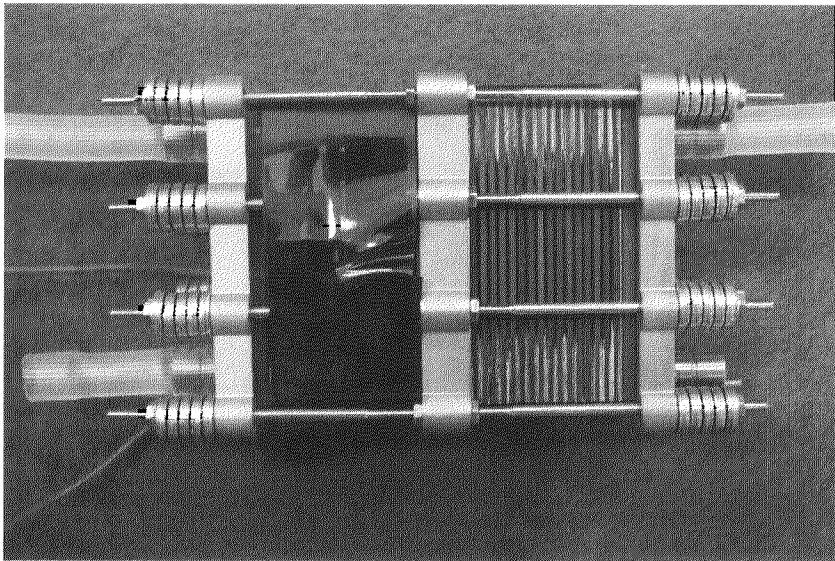
図 2.2 に代表的な DMFC モジュール構造であるパネル型と積層型の外観を示す。自然呼吸型の実装形態は，MEA を面積方向に並べて集電板を電氣的に接続するパ

ネル型，強制吸気型の実装形態は，MEA を縦方向に並べており，セパレータが集電板と流路の機能を備えることで，実装と同時に各セルが電氣的に直列接続される積層型である。

携帯電話を対象アプリケーションとした場合，サイズとコストの関係からパッシブ型が選択され，実装形態はパネル型となる。本稿で対象とする DMFC もパネル型実装のパッシブ型を対象とする。



(a) パネル型



(b) 積層型

図 2.2: DMFC の実装形態外観



次にDMFCの電氣的な特性についてLi電池と比較して述べる。

Li電池単セルの電圧は充電状態により変化するがおよそ2.7~4.2Vである。それに対し、DMFCは理論的に出力可能な最大電圧は1.21Vであるが、現状は0.5~0.8Vである。また、Li電池は電流-電圧特性が図2.3に示すようにほぼフラットであるが、DMFCは小電流領域で急激に電圧が降下し、0.2~0.4Vが実際の使用電圧領域となり、電流依存性が非常に大きい特性を示す。

それに加えてDMFCは排出する水の乾燥速度や触媒の活性化の関係から特に温度、湿度、気圧のような環境条件により出力特性が大きく変化するため、Li電池に比べて出力電力の変動が大きい特性となっている。

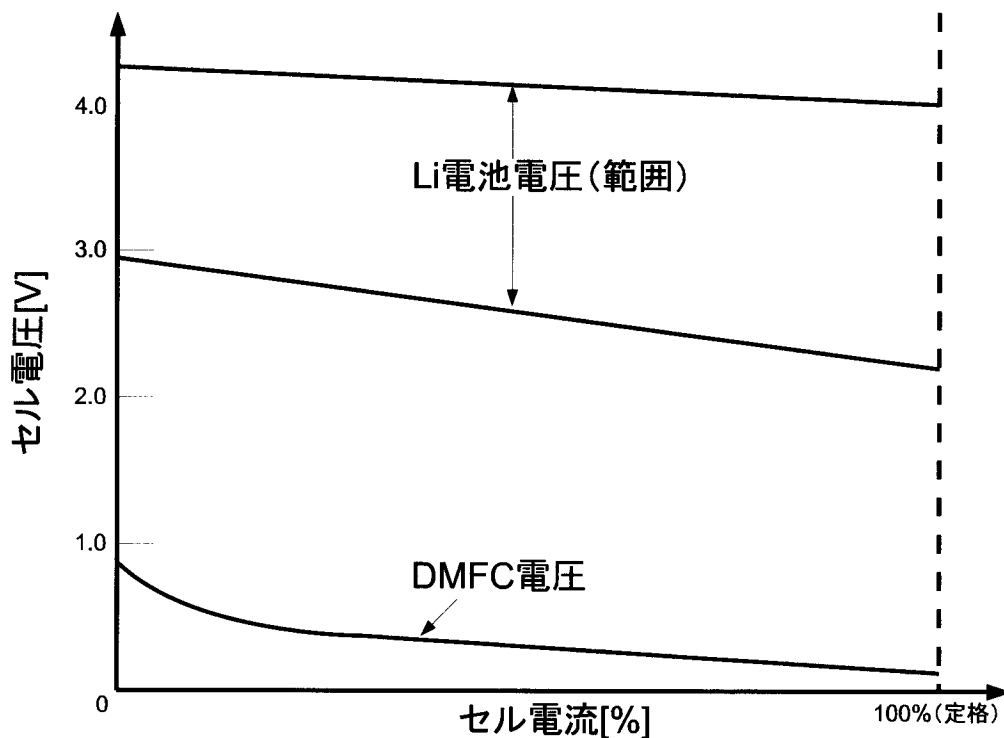


図 2.3: DMFC と Li 電池の単セルの出力特性比較

以上のような特性をふまえて、既存の機器に搭載可能なパッシブ型DMFCを使用した電源システムを構築する。

## 参考文献

- [1] 上野 文雄, " マイクロ燃料電池開発の最新動向, " 電気学会誌, Vol. 126, no.2, pp.76-79, Feb.2006.
- [2] 藤本 浩良, " 燃料電池用電解質膜, " スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, no.F2-3, pp.F2-3-4, Apr.2004.
- [3] 風間 智英, " 携帯用小型燃料電池の市場動向, " スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, no.F2-1, pp.F2-1-7, Apr.2004.
- [4] 竹野 和彦, " 携帯電話用小型燃料電池への期待と開発状況, " スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2005, no.F5-3, pp.F5-2-20, Apr.2004.

### 第3章 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池制御システムの開発

### 3.1 まえがき

近年、携帯機器市場が拡大しており、携帯機器用電池も Ni 系二次電池から Li 系二次電池へ移行し、より高エネルギー密度の電源を求める傾向になっている。携帯機器の代表として携帯電話が挙げられるが、現在、特に電池駆動時間の不足が課題となっている。携帯電話は本来の機能である無線電話機能だけではなく、電子メール、カメラ機能、着信音の高音質化等の付加機能を搭載することにより、ユーザの買い替え需要を喚起して出荷台数を伸ばしてきた。2005 年の世界の出荷台数は 8 億 3280 万台、2006 年には 10 億 1990 万台に達しており [1]、今後も順調な伸びが期待されている。このような携帯電話に近年追加された機能として TV 機能があり、最近では地上波デジタル TV に対応した携帯電話が出荷されている。しかしながら、これまで同様の通話時間を確保した上で TV 機能を使用できるようにするには現在の 2 倍以上の電池容量が必要となるため、現在のリチウムイオン電池の容量を年率 10 % で増加させても不十分である。

さらには、従来の携帯電話よりも大画面、高速処理、高速通信を利点としたスマートフォンも近年シェアを拡大しているが、従来の携帯電話以上に電池容量の不足の問題に直面している。

以上のような電池駆動時間の不足を解決する携帯機器用の次世代電源として燃料電池が期待されている。燃料電池においては、直接または改質して得られた水素を発電燃料として使用する方式が良く知られているが、効率良く発電するためには 70~80 °C 程度の動作温度が必要であり [2]、発熱の安全性が重視される携帯機器用途への適用は難しい [3] [4]。

この課題を解決し、携帯機器で使用できる燃料電池として、直接メタノール形燃料電池 (DMFC: Direct Methanol Fuel Cell) が注目を集めている。DMFC は液体のメタノール水溶液をそのまま燃料として使用して発電する方式であるため、気体燃料を使用するタイプよりシンプルな構造にでき、一般的な携帯機器の動作保証温度範囲である 5 °C から 35 °C で発電可能であるため、携帯機器用途として期待されている。

しかし、DMFC は出力密度が既存の二次電池の  $\frac{1}{10}$  以下であるため、携帯機器用途として使用するためには小型化が課題となる。

小型化を実現するためには、出力密度に優れた二次電池とのハイブリッド構成が現実解であり、リチウムイオン電池等の二次電池とのハイブリッド構成となっているものが各所から発表されている [6]。それに対し、我々は二次電池よりも更に出力密度に優れた電気二重層キャパシタ (EDLC: Electric Double Layer Capacitor) とのハイブリッドシステムを検討した。EDLC ハイブリッド制御に関して、純水素型燃料電池と EDLC とのハイブリッド構成におけるキャパシタの効果は発表されているが [7]、携帯機器用 DMFC システムにおけるキャパシタハイブリッド制御の効果については報告例がない。

本章においては、DMFC の特徴およびその設計方針、我々が開発した DMFC と

EDLCをハイブリッド構成とした携帯機器用充電器システムの構成および制御方法、および本方式を適用することで得られる効果について紹介する。

### 3.2 二次電池とDMFCの特徴の相違

まず、リチウムイオン電池などの既存の二次電池とDMFCとの設計の違いについて以下の図3.1と図3.2を用いて説明する。

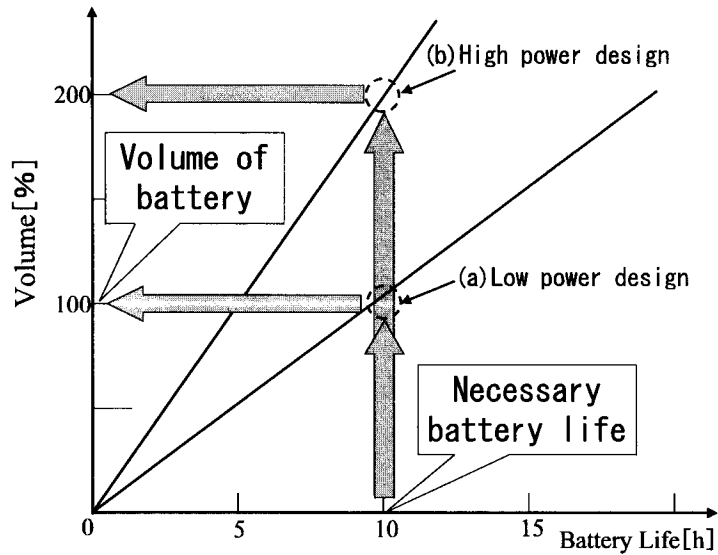


図 3.1: 二次電池の駆動時間と体積の関係

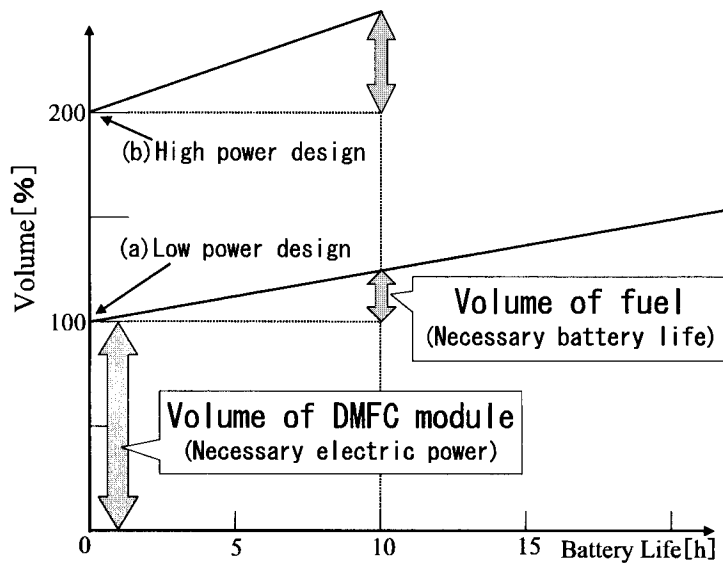


図 3.2: DMFCの駆動時間と体積の関係

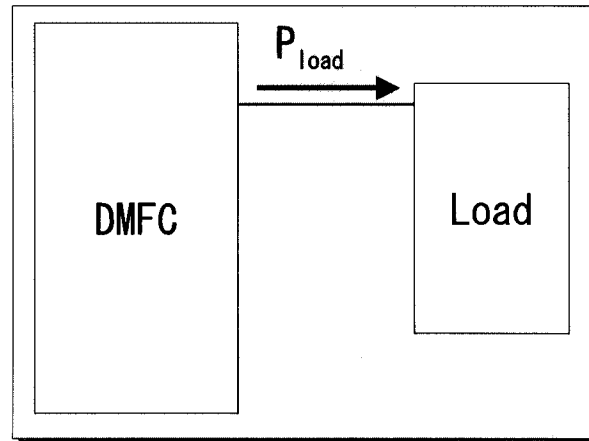
図 3.1 に示すように、リチウムイオン電池など従来の二次電池の駆動時間と体積の関係は、エネルギー密度で傾きが決まる 1 次関数となっている。したがって、必要な駆動時間から対応する電池体積を求めることができる。

これに対し、DMFC は従来の二次電池とは異なり、むしろ発電機のイメージに近く、まず DMFC から出力する最大電力を決定する必要がある。そして、その最大電力によって DMFC モジュールの体積が決まる。これは図 3.2 の切片部分に相当する。したがって、図 3.2 で比較しているように、DMFC の出力すべき電力の大小により、DMFC モジュールの体積が変化し、結果として DMFC 電源の全体体積が大きく変わる。次に必要な駆動時間から必要な燃料の量が決まり、燃料濃度や燃料カートリッジの体積効率 (図 3.2 の傾きに相当) から DMFC 全体の体積が求まる。

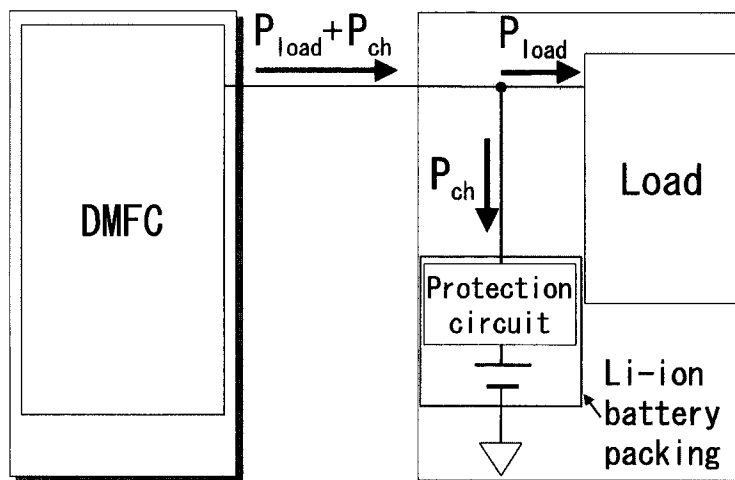
したがって、DMFC を電源に用いる場合は最大電力が小さく、かつ長時間駆動が必要なアプリケーションが有利であることが分かる [5] [6]。

### 3.3 充電器型 DMFC 電源の検討

本稿で対象とする外付け充電器型電源は、負荷機器の DC 入力端子に AC アダプタの代わりに接続する形態である。以上に述べた DMFC の特性に対して、外付け充電器型では供給すべき最大電力が携帯機器の最大駆動電力よりも大きいことが課題となる。以下の図 3.3 に比較を示す。



(a) Power supply in built-in type



(b) Power supply in charger type

図 3.3: 携帯機器用 DMFC 電源構成による供給電力の比較



例えば携帯電話等に搭載されているバッテリーパックのような内蔵型であれば、DMFCは機器の駆動電力  $P_{load}$  を供給可能な容量に設計すれば良い。しかしながら、携帯機器外付け充電器型では携帯電話の駆動電力  $P_{load}$  に加えて内蔵バッテリーパックの充電電力  $P_{ch}$  も必要となり、DMFCが出力すべき最大電力は内蔵型より大きくなる。

携帯電話の場合、図3.3(a)の  $P_{load}$  は0.5~1.5Wであり、図3.3(b)の  $P_{ch}$  は1.5W程度必要である。したがって、充電器型電源は  $P_{load} + P_{ch}$  で3.0W必要となり、DMFCの体積の増加が避けられない。以下、詳細について述べる。

DMFCの中心部分であるDMFCモジュールは燃料タンクも内部に備えた発電部である。現状、このDMFCモジュールの出力密度は、10~20W/Lと見込まれている [8]。また、DMFCは低温時に出力が低下するため [12]、携帯機器保証最低温度 (5℃) を考慮して最低値の10W/LでDMFCモジュール体積を計算すると、3W(5.0V, 600mA)出力のための必要体積は300ccとなる。

しかし、DMFC単セルの実使用電圧は約0.2~0.7Vと既存の二次電池より低く、負荷により大きく変動する。したがって、安定した出力供給とDMFCのセル数の削減のために昇圧型DC/DCコンバータを使用する。コンバータの電圧変換効率を最低80%として計算すると、コンバータ出力端から3Wを出力するために必要なDMFCモジュールの体積は375ccとなる。

また、昇圧型DC/DCコンバータの体積はその出力密度を1W/ccとすると3ccとなり、発電に最低必要なDMFCモジュールと昇圧型DC/DCコンバータの体積の合計は378ccとなる。下記の図3.4に既存の携帯電話サイズとの比較を示す。

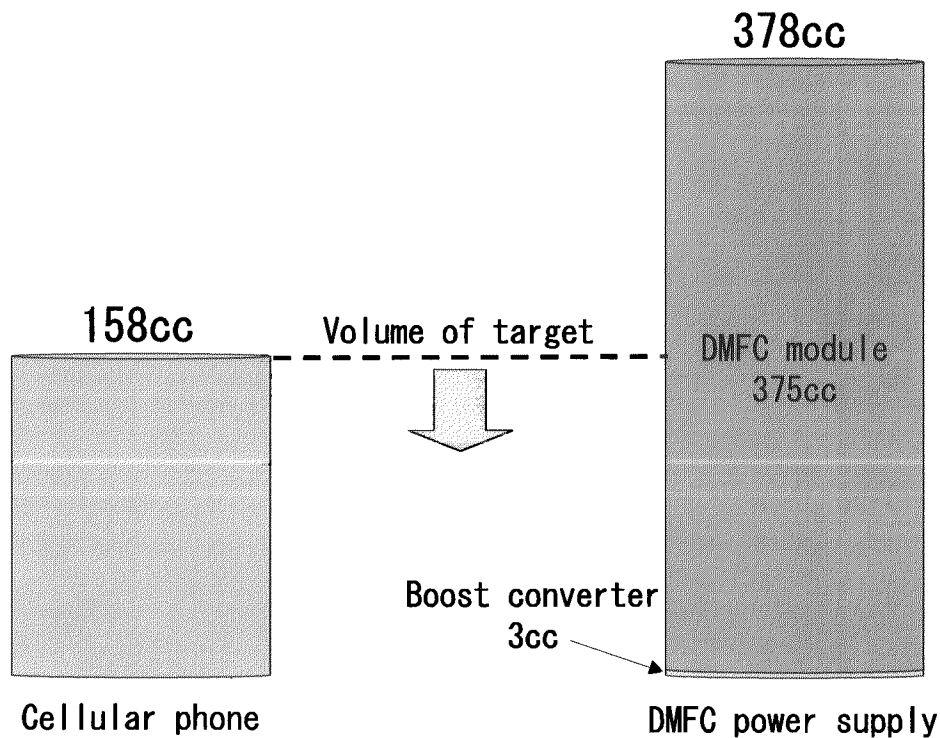


図 3.4: 携帯電話と DMFC 電源の体積比較

許容される体積の参考として携帯電話本体を目標としたが、DMFCのみで前記の最大電力を出力可能なように設計すると、現状ではDMFCモジュールの大きさが携帯電話本体の約2.4倍になることが分かった。DMFCモジュールの小型化のためには出力密度向上が効果的であるが、現状の半分以下に小型化が可能となるような出力密度の向上は難しい。そのため、DMFCに加えて別の蓄電デバイスとのハイブリッド構成にすることが小型軽量化に有効であり、主にリチウムイオン電池とのハイブリッドシステムが提案されている [6]。

しかしながら、充電器型DMFC電源においてリチウムイオン電池をハイブリッド構成にした場合は、リチウムイオン電池の残量が0になった時点でたとえ燃料が残っていても再度充電されるまでの期間は使用できなくなるため、DMFCは燃料さえ供給すればすぐに利用可能という利点が無くなる。

以上の検討から、DMFC を外付け充電器型に適用するために必要な以下の3つの要求特性が抽出された。

- AC アダプタ定格の電力を供給可能  
(5V, 600mA)
- DMFC 電源の小型化 (158cc 以下)
- 燃料供給すればすぐに利用可能

### 3.4 パルスチャージ制御システムの提案

以上に挙げた3つの要求特性を全て満足する制御システムとして、パルスチャージ制御システムを提案した。システム構成を図3.5に示す。

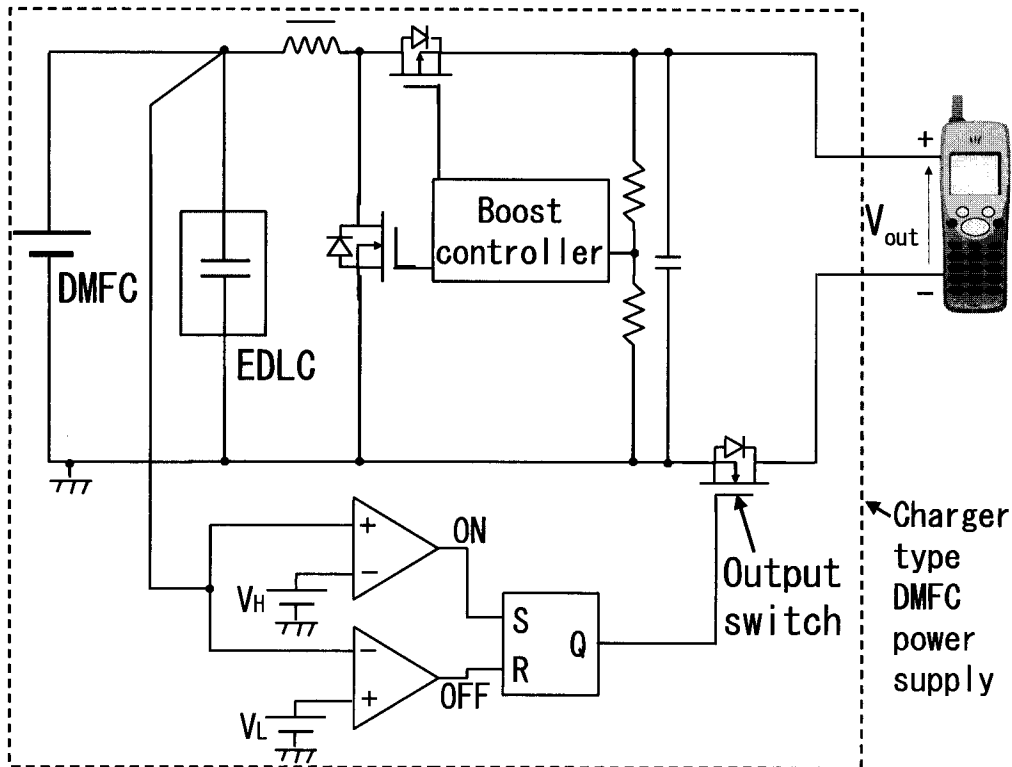


図 3.5: パルスチャージ制御システム

図3.5から分かるように、パルスチャージ制御システムはDMFCと電気二重層キャパシタ(EDLC)とのハイブリッド構成である。本システムでは、EDLCを最小の1セルとし、DMFCは4セルのセル構成としている。

次に、パルスチャージ制御の基本動作について説明する。パルスチャージ制御は昇圧型DC/DCコンバータ(同期整流方式)の出力端の通電と遮断を出力スイッチで制御することにより実現する。

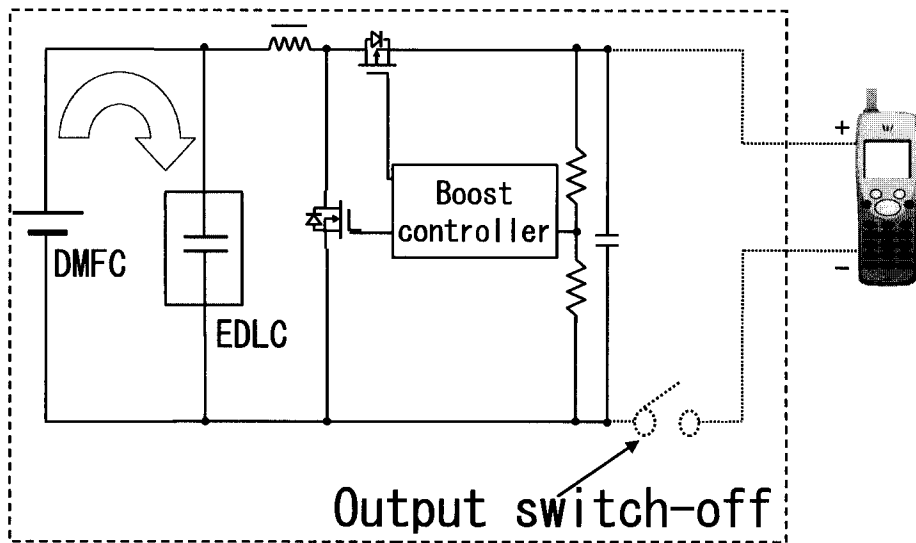
図3.5に示すように、EDLCの電圧を監視し、基準値 $V_H$ を上回った時点で出力スイッチをオンし、基準値 $V_L$ を下回った時点でオフする。基準値 $V_L$ は昇圧型DC/DCコンバータの動作下限電圧以上(例えば1.2V)に設計し、基準値 $V_H$ はEDLCの寿命への影響が小さい電圧以下(例えば1.8V)に設計する。また、上限電圧1.8V、下限電圧1.2V時のEDLCエネルギー利用率 $\eta$ は

$$\eta = \frac{\frac{1}{2}C(V_H^2 - V_L^2)}{\frac{1}{2}CV_H^2} \quad (3.1)$$

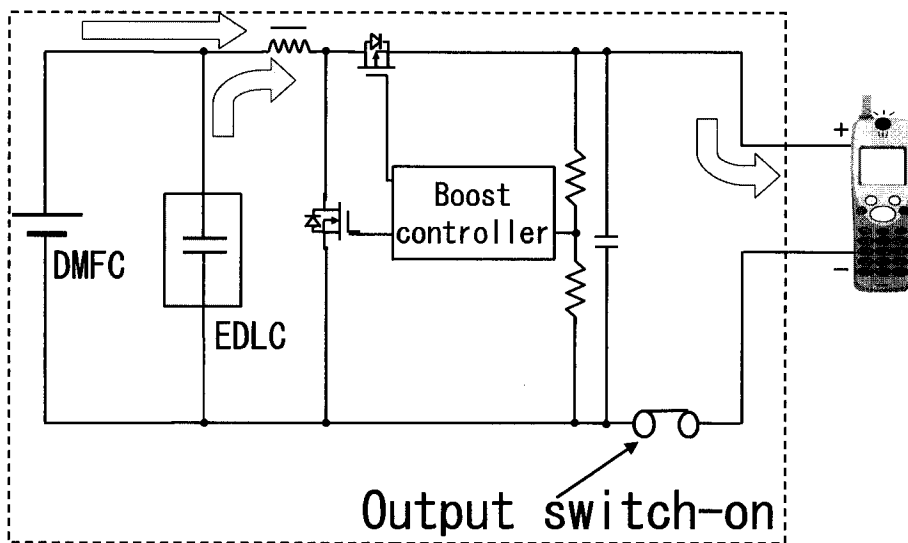
より0.56となり、1~2Vの低電圧であるが50%以上の利用率設計である。オン、オフそれぞれについて図3.6を用いて以下で説明する。

図3.6(a)で出力スイッチをオフすると、携帯電話への給電が止まって無負荷となる。この時、昇圧型DC/DCコンバータは動作しており、制御回路のみに電力を供給しているが、この電力は数mW以下であり、負荷の3Wと比較して十分小さい。DMFCと並列にEDLCが接続されているため、DMFCからEDLCへの充電に伴って、EDLCおよびDMFCの電圧は徐々に上昇する。

図3.6(b)で出力スイッチをオンすると、携帯電話への給電が始まる。この時、DMFCと電気二重層キャパシタが並列に負荷への電力供給を行う。このとき、負荷がDMFCの放電能力より高い場合でもキャパシタが不足分を出力することが特徴である。すなわち、ACアダプタ互換の電力供給可能という要求特性を満足する。



(a) Charge mode



(b) Discharge mode

図 3.6: パルスチャージ制御動作

また、DMFC からの出力電力が小さい場合でも電気二重層キャパシタのみの放

電で携帯電話へ電力供給が可能であるため、DMFC モジュールは携帯電話の平均電力を出力できる容量があれば十分であり、小型化が可能となる。携帯電話の平均電力としては連続通話時の電力があり、現状 600mAh の Li イオン電池を搭載した携帯電話の連続通話時間は 3 時間以上である。つまり、平均電流は 200mA 以下となり、充電器の出力電圧 5.0V から、平均 1W 出力で充電器を設計できる。したがって、充電器出力を 3W から 1W に低下できることで、DMFC モジュールの小型化という第二の要求特性も満足する。

さらに、ハイブリッドにした蓄電デバイスを使用者が充電する必要は無く、燃料供給のみですぐに利用可能という第三の要求特性も満足する。

### 3.5 パルスチャージ制御システム用EDLC

パルスチャージ制御システムに使用するEDLCの特性比較のために、現在の蓄電デバイスの分布を図3.7に示す。

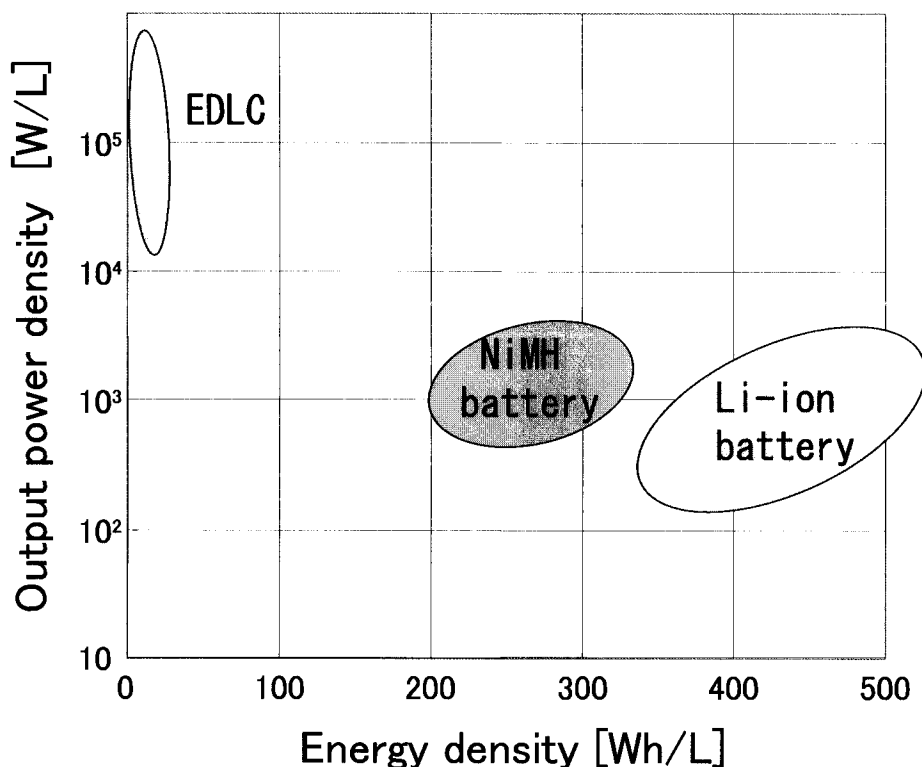


図 3.7: 蓄電デバイスのエネルギー密度と出力密度の分布

図 3.7 に示す通り、図示のデバイスの中で EDLC はエネルギー密度は低いが出力密度が最も高いため、パルスチャージ制御のように DMFC の不足電力を短時間サポートする用途に対して小型・軽量化に最も適している蓄電デバイスである。

次に、EDLC は二次電池のような充放電電流の制限がないため、DMFC の状態に合わせて EDLC を秒オーダーで充電でき、燃料補給後 1 分程度で使用できる状態にできるため、燃料供給のみですぐに利用可能という面でも最も適している [9] [10]。

また、EDLC には前記充放電電流の制限がないことや長期保管時の過放電の問題が無いことから、管理も非常に簡単になる。ただし、一般に単セルの耐圧が 2.5V と低いため、EDLC に印加される電圧を耐圧内に制限する保護機能が必要となるが、これはシャントレギュレータを使用することで実現できる。

さらに、二次電池のサイクル寿命に相当する充放電の繰り返しによる性能低下が小さいため、性能低下を見込んだ容量増加も必要ない。



本パルスチャージ制御システムで使用するために試作したEDLCを図3.8に示す。体積は約2ccである。(株式会社エスアイアイ・マイクロパーツ製)

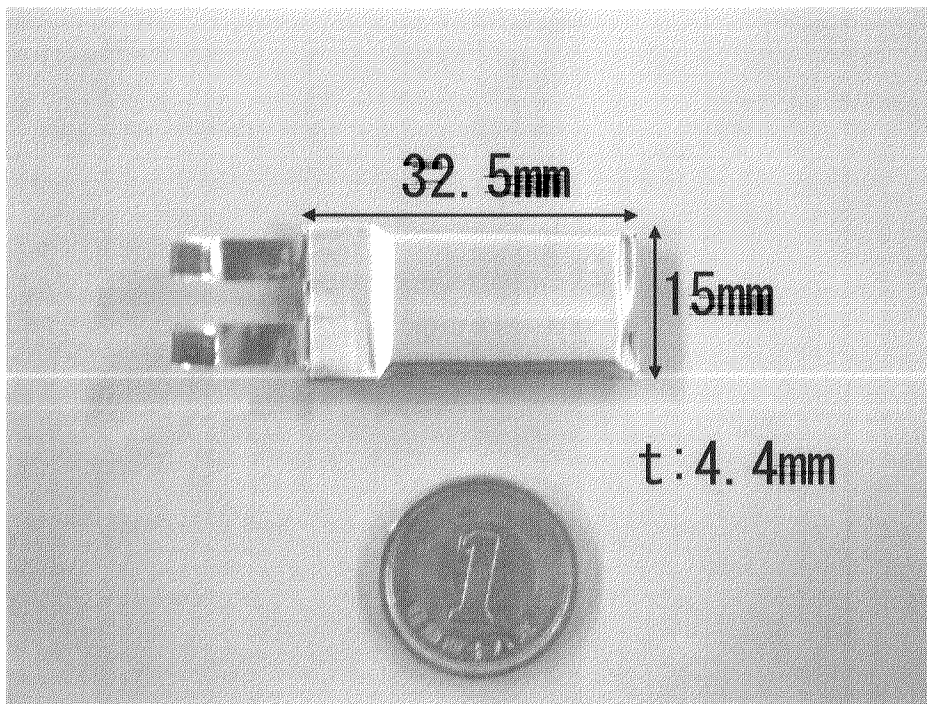


図 3.8: EDLC 試作品外観

### 3.6 パルスチャージ制御システム適用結果

パルスチャージ制御システムを適用した全 DMFC 電源体積を図 3.9 に示す。

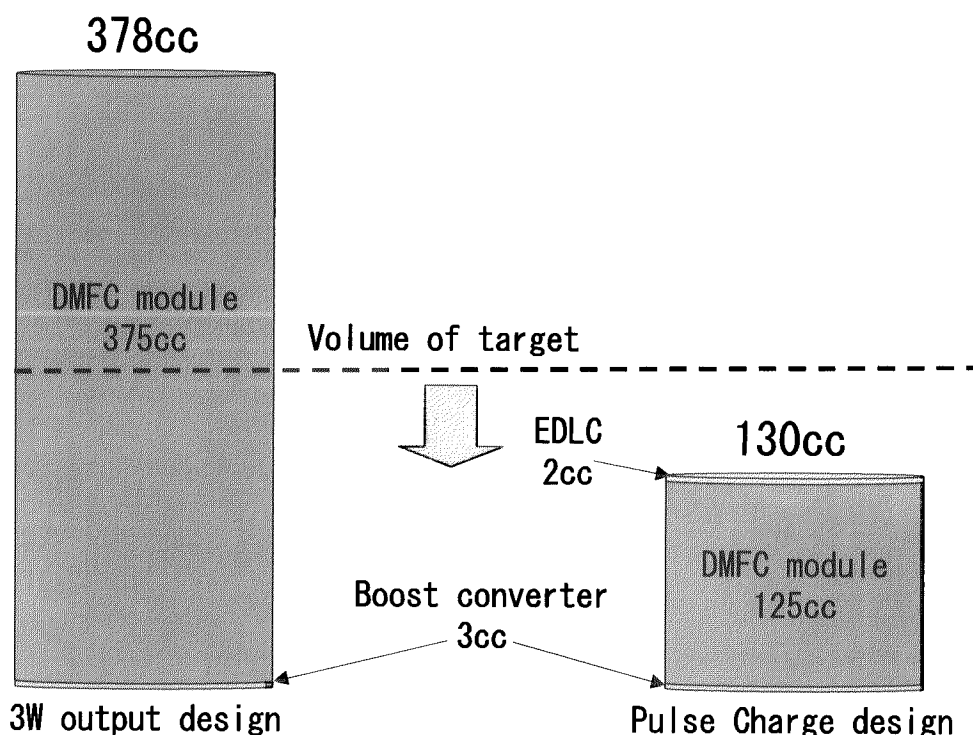


図 3.9: パルスチャージ設計を適用した DMFC 電源体積の小型化効果比較

DMFC モジュール体積は DMFC 発電電力に比例しているため 3分の1 に減少する。回路体積は前述の EDLC 分が 2cc 増加するが、減少分と比較して十分に小さいと言える。パルスチャージ方式を適用することによって、全体体積が目標サイズ内に収まる見通しを得た。

次に、EDLC の代わりに、リチウムイオン電池をパルスチャージ制御システム用蓄電デバイスとして適用した場合の体積についても計算し、比較する。前記同様に DC/DC コンバータの出力を 3W、効率を 80% と仮定すると、リチウムイオン電池に要求される電力は 3.75W となる。リチウムイオン電池の放電終止電圧を 3.0V、最大電流を 1C とすると 1250mAh のリチウムイオン電池が必要となる。また、一般的な Li 電池のサイクル寿命として 500 回を勘案すると [11]、本条件では充放電合わせて最低 1000 時間となるため、一般的な携帯機器の寿命である 3000 時間以上を実現するには、3 倍の 3750mAh が必要となる。したがってリチウムイオン電池の容量は、平均電圧 3.7V とすると  $3.7V \times 3.75Ah = 13.875Wh$  となり、容

量密度を 400Wh/L で計算するとリチウムイオン電池の体積は約 35cc となる。蓄電デバイスに EDLC とリチウムイオン電池を適用した場合の体積の比較を以下の図 3.10 に示す。

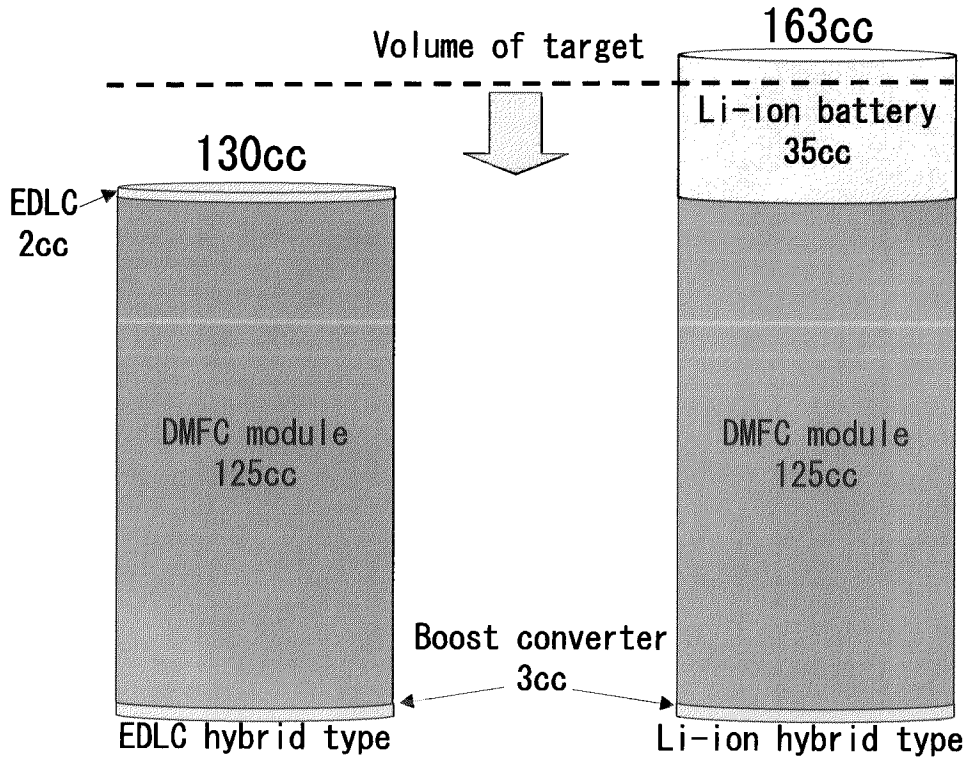


図 3.10: Li 電池ハイブリッド型との体積比較

リチウム電池ハイブリッド型の体積見積りは携帯電話よりも大きくなり、EDLC ハイブリッド型の体積見積りが最も小さくなることが分かった。

また、本システムは図 3.11 に示した DMFC 充電器に適用し、小型の DMFC 電源を実現した [12] [13]。

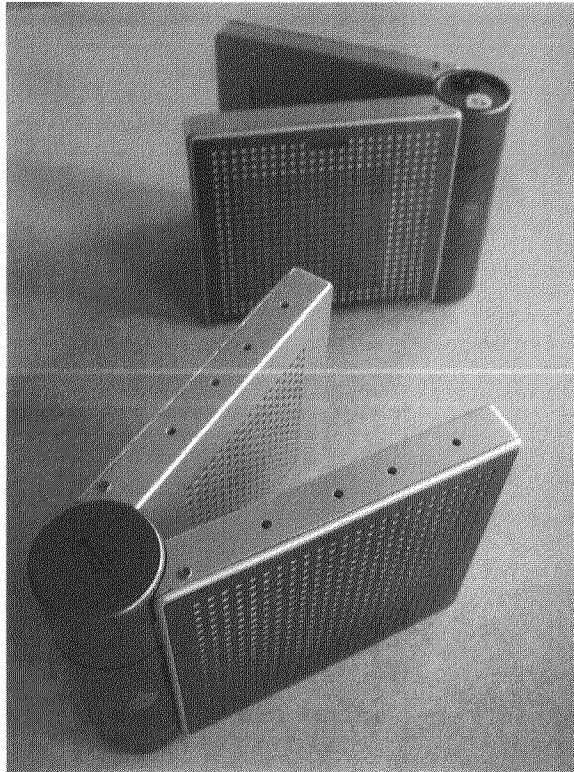


図 3.11: DMFC 充電器外観

### 3.7 まとめ

充電器型 DMFC システムとして、EDLC をハイブリッド電源としたパルスチャージ制御システムを提案した。

パルスチャージ制御システムは、DMFC から出力される電荷を EDLC に充電し、負荷に供給可能な電荷量になった時点で一気に放電するという、2つのモードを繰り返す間欠型電源である。無論このような動作では、負荷に必要な安定した電気エネルギーを供給することはできず、負荷側に二次電池を有し、その二次電池とハイブリッド構成を採ることが前提となる。しかし、本方式により、既存の AC アダプタとインタフェースの互換性を有しつつ、二次電池を充電するために必要な DMFC 体積を低減できる。

また、DMFC の出力が変動しても、無理なくエネルギーの供給が可能となり、燃料供給のみでシステムの駆動が可能となる。最後に、EDLC の適用がその他の蓄電デバイスの適用よりも小型化の面で有利となることも示された。

## 参考文献

- [1] Ryan Reith, IDC-Press Release, Ramon Llamas, ed., IDC, Framingham, 2007.
- [2] 藤本 浩良, ” 燃料電池用電解質膜, ” スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, ”no.F2-3, pp.6, Apr.2004.
- [3] 越前谷 三夫, ” 携帯電話における発熱事例・熱対策と今後の動向, ” 熱設計・対策技術シンポジウム 2005, no.G3-1, pp.5, Apr.2005.
- [4] Chary, Ram, Pat Correia, Ravi Nagaraj, and James Song :「Intel Low-Power Technologies Can Extend Battery Life and Improve Device Usability」Technology@Intel magazine,September 2004,pg 1
- [5] Shimshon Gotesfeld ,”DMFCs for Portable Power: Development of DMFC Technology and Products at MTI MicroFuel Cells:WPC2003,”no.T1,pp.2,Tokyo,Sep.2003.
- [6] 風間 智英, ” 携帯用小型燃料電池の市場動向, ” スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, ” 分冊 1, no.F2-1, pp.13, Apr.2004.
- [7] 佐藤 健児,” 電気二重層キャパシタシステムの燃料電池自動車への応用,” 信学技報, Vol.104, No.576, pp.65-70, Jan.2005.
- [8] 風間 智英, ” 小型燃料電池の市場・技術動向, ” スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2005, ” 分冊 1, no.F5-1, pp.4, Apr.2005.
- [9] 山木 準一, ” 総論, ” 電気学会誌, Vol. 126, no.2, pp.69-71, Feb.2006.
- [10] 江頭 港, ” 電気化学キャパシタの最新動向, ” 電気学会誌, Vol. 126, no.2, pp.80-83, Feb.2006.
- [11] 竹野 和彦, ” モバイル端末のパワーマネジメント技術, ” 電気学会誌, Vol. 126, no.2, pp.84-87, Feb.2006.
- [12] 叶田 玲彦, ” モバイル機器向け燃料電池, ” 平成 18 年 電気学会産業応用部門大会, ” 分冊 2, no.2-S2-6, pp.47-48, Aug.2006.

- [13] 乗松 泰明, ” 電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池の開発, ” 平成 19 年 電気学会全国大会, 分冊 4, no.4-021, pp.34, Mar.2007.

## 第4章 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向けパッシブ温度制御システムの開発



## 4.1 まえがき

前章においては、DMFC 向けに提案したパルスチャージ制御システムのシステム構成、制御方法、およびパルスチャージ制御システムを適用することで得られる効果について紹介した。

DMFC を使用した携帯機器用のシステム構成は、リチウムイオン電池等の二次電池とのハイブリッド構成となっているものが各所から発表されている [1]。提案したパルスチャージ制御システムは、二次電池よりも更に出力密度に優れた電気二重層キャパシタ (EDLC: Electric Double Layer Capacitor) とのハイブリッドシステムである [2] [3] [4]。

図 4.1 にパルスチャージ制御の電圧・電流の動作波形の一例を示す。携帯電話への供給電力である  $V_{out}$  は断続的に数秒程度の給電時間となっているが、DMFC は連続的に出力していることが特徴である。本充電器は携帯電話を使用しながら電力供給を行うことで携帯電話の使用時間を延長を目的としており、リチウムイオン電池の定電流充電領域への電力供給となる。したがって、リチウムイオン電池の定電圧充電時間を短縮するために、リチウムイオン電池の耐圧以上に充電時のセル電圧を上昇させてパルスの充電するリチウムイオン電池のパルス充電とは異なる充電方法である。

また、DMFC からの出力電力が小さい場合でも電気二重層キャパシタのみの放電で携帯電話へ電力供給が可能であるため、DMFC モジュールは携帯電話の平均電力を出力できる容量があれば十分であり、小型化が可能となる。携帯電話の平均電力としては連続通話時の電力があり、現状 600mAh のリチウムイオン電池を搭載した携帯電話の連続通話時間は 3 時間以上である。つまり、平均電流は 200mA 以下となり、充電器の出力電圧 5.0V から、平均 1W 出力で充電器を設計できる。したがって、充電器出力を 3W から 1W に低下できることで、特に DMFC モジュールの小型化により DMFC 電源体積の小型化も実現できる。

さらに、リチウムイオン電池をハイブリッドとした場合は、リチウムイオン電池が低充電状態となった時に使用者が最低数分以上は充電しなければ充電器として使用できないが、電気二重層キャパシタハイブリッドにした場合は、DMFC 電力のみで 1 分以内に電気二重層キャパシタを充電可能であるため、使用者が外部電力で充電する必要は無く、燃料供給のみですぐに利用可能という燃料電池の利点も満足する。

パルスチャージ制御システムは携帯機器への適用を想定しているが、携帯機器において、最近発熱対策が重要となってきている [5]。DMFC は水素型の燃料電池である PEFC よりも低温で動作可能であるが [6]、高出力を得るためにはできるだけ DMFC を高温で動作させることが望ましい [7] [8]。したがって、提案したパルスチャージ制御システムをベースとした DMFC 温度制御が必要であると考え、検討を行った。

本稿においては、我々が開発した DMFC と EDLC をハイブリッドとした携帯機

器用充電器システムの構成および制御方法、および本方式を利用したパッシブ温度制御方式の提案およびその実験結果について紹介する。

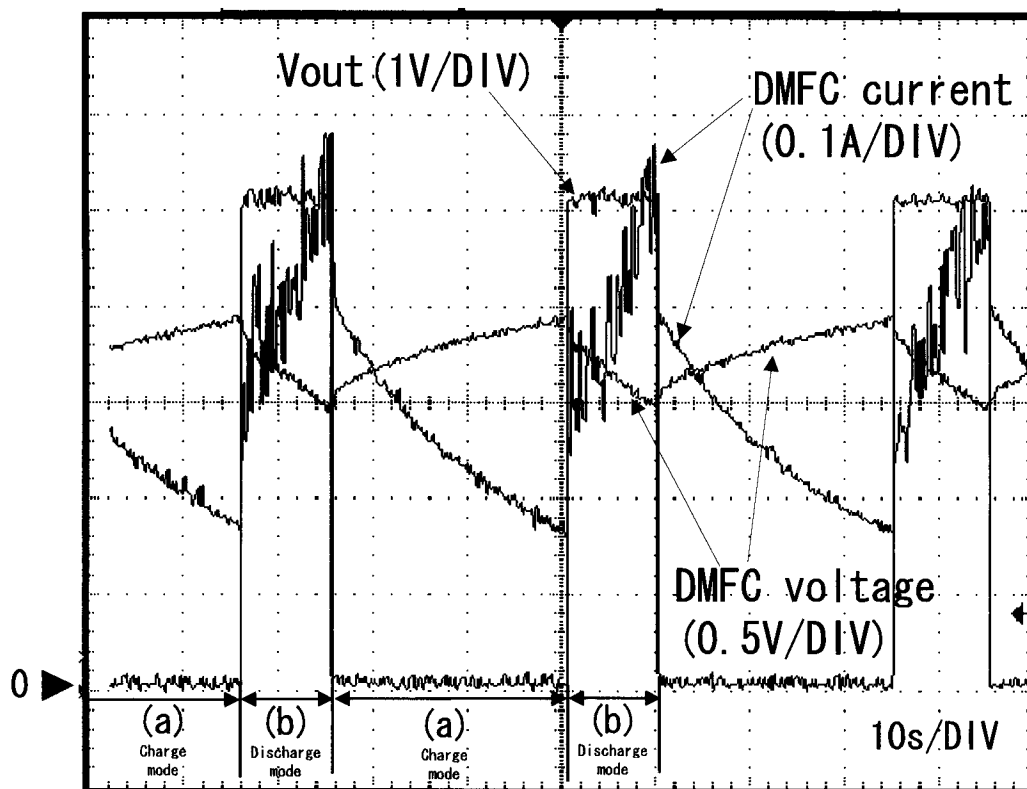


図 4.1: パルスチャージ制御波形

## 4.2 DMFCの温度特性と最大電力点の関係

前章で報告した通り、パルスチャージ制御システムを適用することで得られる最大の効果は、DMFC 発電部面積を携帯電話の充電端子定格の3W 分から平均電力の1W 分、つまり DMFC 発電部面積を3分の1に縮小できることによる小型化である。このような小型・高密度化により利用可能な放熱面積が小さくなっており、かつDMFCは出力に対する発熱が約2~4倍以上とLi電池と比較して大きいことから、温度上昇が大きな課題となって見えてきた。したがって、パルスチャージ制御システムもDMFCの発熱を制限する出力制御をする必要があると考えた。以下では、パルスチャージ制御システム用温度制御の設計検討について述べる。

まず、温度上昇を考慮したパルスチャージ制御システムの動作電圧を設計するために、DMFCの温度特性と最大電力点の関係について検討した。

図4.2にDMFCの温度特性を示す。

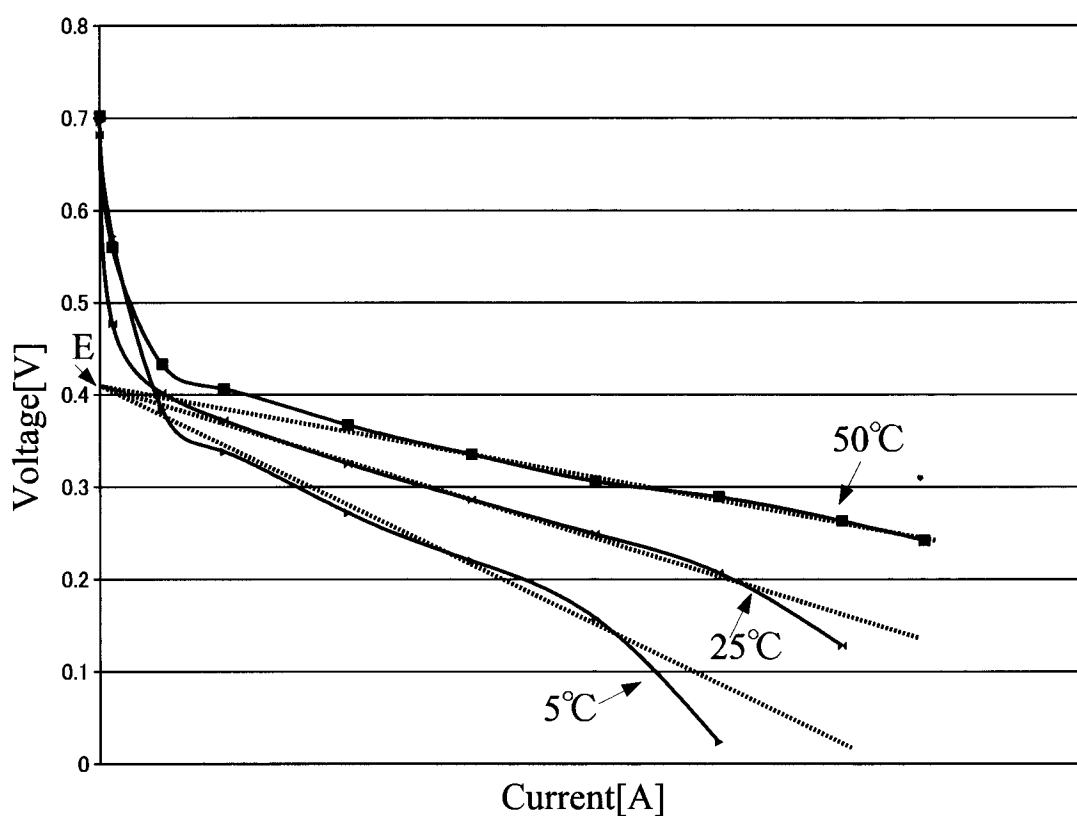


図 4.2: DMFC の温度特性

本温度特性は、DMFCの空気極がパッシブの条件で、DMFC温度を変化させた時のI-V特性である。I-V特性の高電流領域を直線で外挿し、左記直線が電圧軸と

交わる点から外挿点電圧を求めることができ、これは図 4.2 中の  $E$  となる。このことから、外挿点電圧  $E$  以下の領域の直流等価回路モデルは図 4.3 のように、外挿点電圧  $E$  の電圧源と  $I$ - $V$  カーブの傾きから求まる抵抗  $R$  の直列回路とみなすことができる [9] [10]。

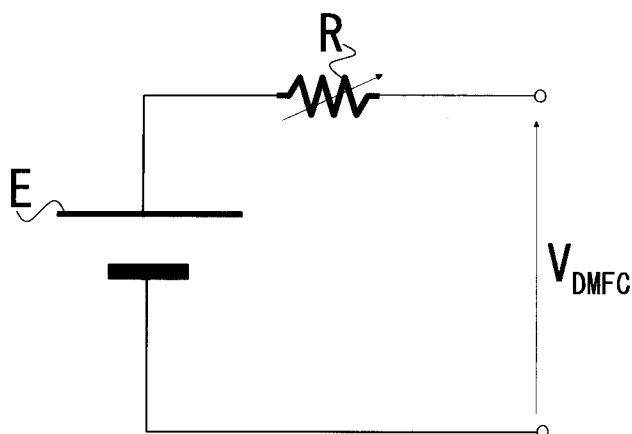


図 4.3: DMFC の直流等価回路

抵抗  $R$  は DMFC の状態 (温度, 空気流量等) に応じて変化するが [7], 外挿点電圧  $E$  は条件が変化しても一定である。また, 図 4.3 に負荷抵抗  $R_o$  を接続したときの負荷抵抗  $R_o$  で消費される電力, すなわち DMFC の出力電力  $W$  は以下のように求められる。

$$W = R_o \left( \frac{E}{R + R_o} \right)^2 = \frac{1}{2 + \frac{R_o}{R} + \frac{R}{R_o}} \frac{E^2}{R} \quad (4.1)$$

$\frac{R_o}{R} + \frac{R}{R_o}$  が最小値となるときに  $W$  は最大値となり, その条件は  $R=R_o$  である。したがって, DMFC 出力が最大となる条件は,  $R=R_o$  から, DMFC の出力電圧  $V_{DMFC}$  が  $\frac{E}{2}$  の時である。

図 4.4 が以下で使用する DMFC の電流に対する電圧と電力の特性である。図 4.2 の DMFC 特性よりも外挿点電圧  $E$  が向上し, 0.45V となった。また,  $\frac{E}{2}$  時の出力は, 以上で述べた通り最大電力点となる。DMFC の電流と使用燃料量は比例するが, 最大電力点以上に DMFC から電流を出力すると, DMFC の出力電力が低下して燃料を無駄に使用することから, DMFC の出力範囲が最大電力点以下となるように使用電圧は  $\frac{E}{2}$  以上の領域を使用する。

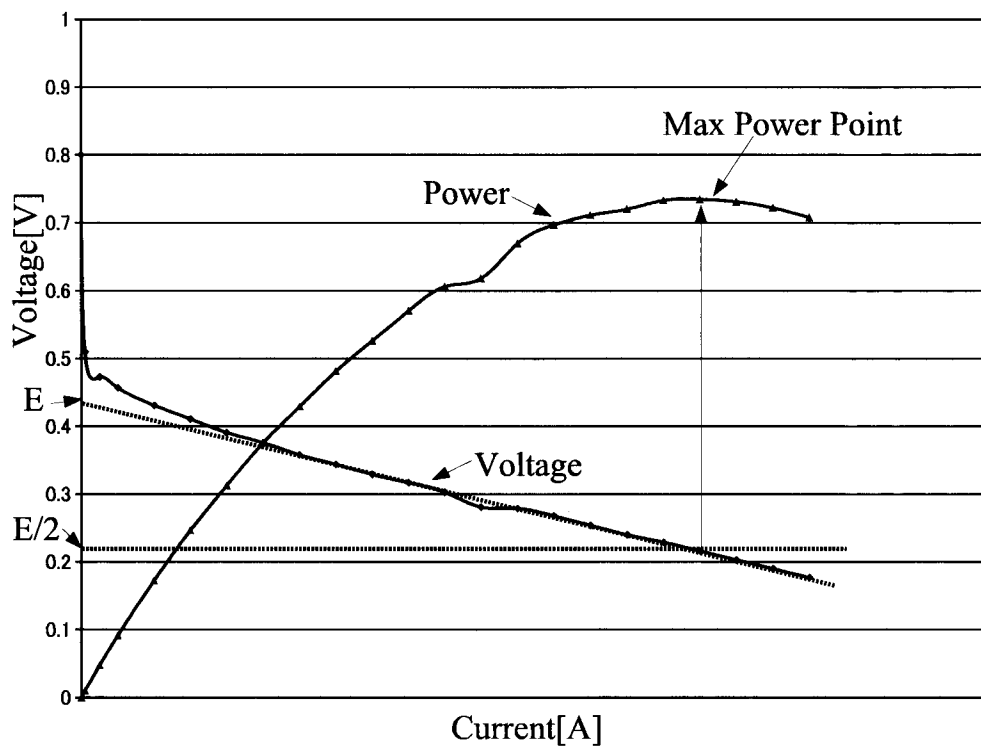


図 4.4: DMFC 電圧と DMFC 電力の特性

### 4.3 パルスチャージ制御システム用パッシブDMFC温度制御方式の検討

次に、DMFC 出力に対する DMFC の発熱について検討した。

DMFC は各分極電圧の影響で理論電圧 1.21V よりも出力電圧が小さくなっている。したがって、理論電圧と逆電圧となる各分極電圧の差が前述した外挿点電圧 E となるため、DMFC の発熱を考える場合は各分極電圧による逆電圧の損失を加味しなければならない。

つまり、ある DMFC 出力電圧における電力と DMFC の理論電圧 1.21V における電力との差が発熱分と考えられ、図 4.5 に示すように出力電力よりも大きい。したがって、DMFC の発熱を考慮して DMFC の使用電圧を設計する必要があると考えた。

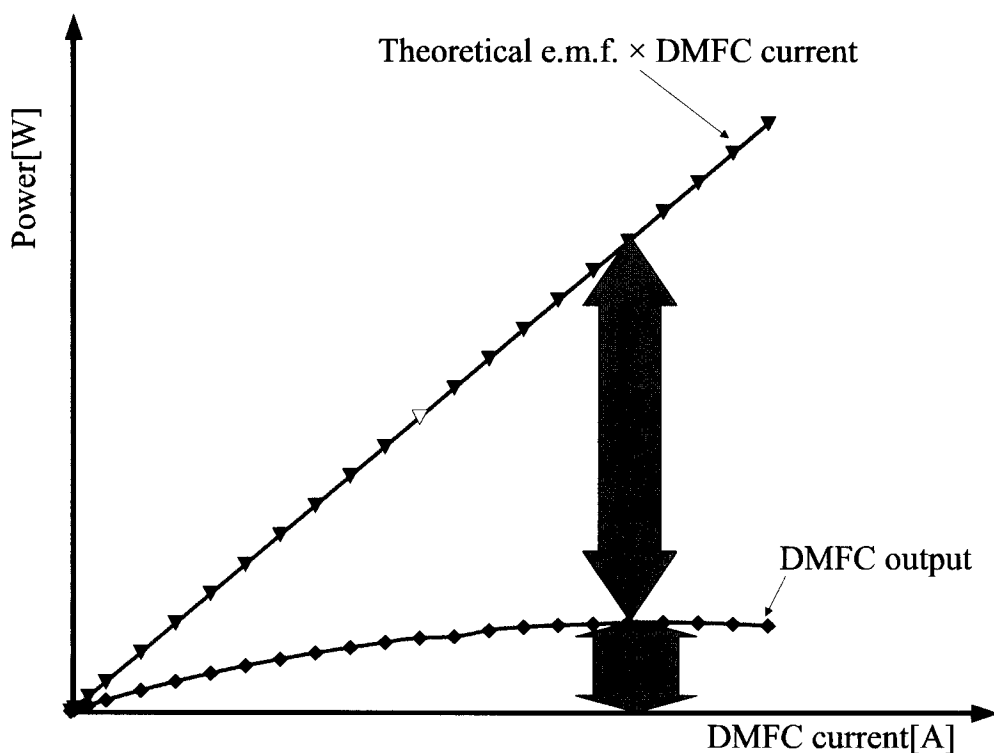


図 4.5: 出力と発熱の関係

前述したように、パルスチャージ制御システムの動作は上限電圧で EDLC の充電から放電に切り替わり、下限電圧で EDLC の放電から充電に切り替わる動作であるため、上限電圧と下限電圧の間が平均動作電圧となる。

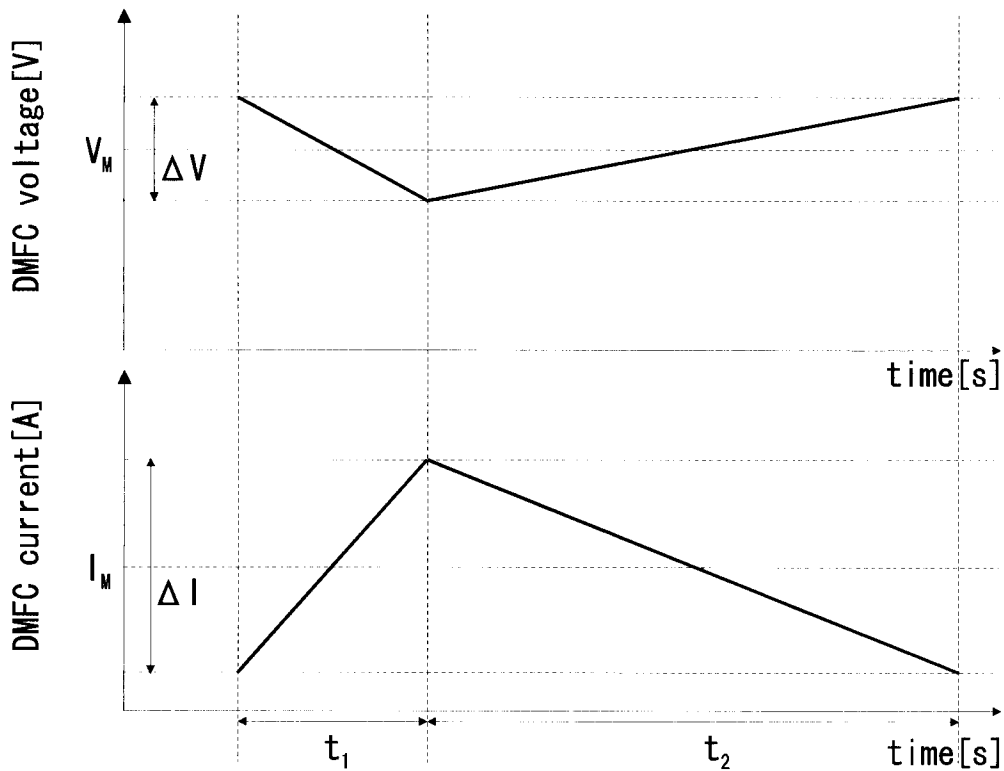


図 4.6: DMFC 電圧・電流波形

平均電圧を考えるために、図 4.6 に示すようなパルスチャージ制御 1 周期分の近似波形で考えた。電圧・電流の変動幅をそれぞれ  $\Delta V$  [V],  $\Delta I$  [A], 変動の中間となる電圧値と電流値をそれぞれ  $V_M$  [V],  $I_M$  [A], 放電時間を  $t_1$ , 充電時間を  $t_2$  とする。1 周期の平均となる DMFC の出力電力  $W$  [W] は、以下の式となる。

$$W = \frac{1}{t_1 + t_2} \left\{ \int_0^{t_1} \left( V_M + \frac{\Delta V}{2} - \frac{\Delta V}{t_1} t \right) \left( I_M - \frac{\Delta I}{2} + \frac{\Delta I}{t_1} t \right) dt + \int_0^{t_2} \left( V_M - \frac{\Delta V}{2} + \frac{\Delta V}{t_2} t \right) \left( I_M + \frac{\Delta I}{2} - \frac{\Delta I}{t_2} t \right) dt \right\} \quad (4.2)$$

(3) 式から以下の式が得られる。

$$W = V_M I_M + \frac{\Delta V \Delta I}{12} \left( 2 + \frac{3(t_2 - t_1)}{t_1 + t_2} \right) \quad (4.3)$$

例えば図 4.1 を参考として、 $\Delta V = 0.2V_M$ ,  $\Delta I = I_M$ ,  $t_2 = 2.5t_1$  を (4) 式に適用すると、

$$W = 1.05V_M I_M \quad (4.4)$$

したがって、平均動作電圧は変動の中間となる  $V_M$  とほぼ同等の値となり、誤差は 5%以内となる。

まず、平均動作電圧における出力と発熱の最大電力点に対する比を検討した。DMFC の最大出力は前述の通り、DMFC 電圧の  $\frac{E}{2}$  の時の電力であるため、

$$W_{MAX} = \frac{E^2}{4R} \quad (4.5)$$

また、平均動作電圧  $V[V]$  における DMFC 出力電力  $W[W]$  は、

$$W = \frac{V(E - V)}{R} \quad (4.6)$$

したがって、平均動作電圧における電力と最大電力との出力比  $\frac{W}{W_{MAX}}$  は、

$$\frac{W}{W_{MAX}} = \frac{4V(E - V)}{E^2} \quad (4.7)$$

次に、平均動作電圧における出力と発熱の最大電力点に対する比を検討した。

最大電力点における DMFC の発熱は、最大電力点における電流  $\frac{E}{2} \times \frac{1}{R}$ 、理論電圧との電位差  $1.21 - \frac{E}{2}$  から、

$$W_{TMAX} = \frac{E(1.21 - \frac{E}{2})}{2R} \quad (4.8)$$

また、平均動作電圧  $V[V]$  における DMFC の発熱は、

$$W_T = \frac{(1.21 - V)(E - V)}{R} \quad (4.9)$$

したがって、平均動作電圧における DMFC の発熱と最大電力点における DMFC の発熱の比  $\frac{W_T}{W_{TMAX}}$  は、

$$\frac{W_T}{W_{TMAX}} = \frac{2(1.21 - V)(E - V)}{E(1.21 - \frac{E}{2})} \quad (4.10)$$

以上の結果から、出力および発熱の比は電圧のみにより表現できることが分かった。前述のように、本開発に使用する DMFC 単セルの外挿点電圧  $E$  は 0.45V であることから、平均動作電圧における電力と最大電力との出力比  $\frac{W}{W_{MAX}}$  と平均動作電圧における DMFC の発熱と最大電力点における DMFC の発熱の比  $\frac{W_T}{W_{TMAX}}$  を算出することができる。各関係を表 4.1 に示す。

使用時の DMFC 最大電力は、前述の通り温度等の環境条件によって逐次変動するため、現在出力可能な最大電力の何%を使用しているのかを知ることは難しかった。しかし表 4.1 に示すように、使用電圧を決めることで、DMFC 最大電力の絶対値が変動した場合でも、最大電力点を越えることはなく、また最大電力の 80.2%といったような出力をシステムとして保証することもできる。さらに、単セル



表 4.1: DMFC 出力と DMFC 発熱の関係

V[V]	$\frac{W}{W_{MAX}}$ [%]	$\frac{W_T}{W_{TMAX}}$ [%]
0.425	21.0	8.83
0.400	39.5	18.2
0.375	55.6	28.2
0.350	69.1	38.7
0.325	80.2	49.9
0.300	88.9	61.5
0.250	98.8	86.6
0.225	100	100

使用電圧を制御することで表 4.1 のように DMFC の発熱を制御でき、ファンを使用しないパッシブ温度制御が実現できると考えた。

本稿で対象とする DMFC は 4 セルで 1.5V, 0.8A を定格出力としている。単セルあたりに換算すると、0.375V であり、最大出力の約半分となっている。

また、上記定格から換算すると 1.5V における発熱は、 $(1.21 \times 4 - 1.5) \times 0.8 = 2.672$  [W] と算出できる。

米 Intel 社では、表面積約 300cm<sup>2</sup> の小型の携帯機器の場合、平均的な条件下で放散可能な熱は 5W 以下であるとしている [11]。本充電器は表面積約 300cm<sup>2</sup> 以上であり、定格における発熱も 5W 以下となっており、上記基準を満たしている。

しかしながら、環境温度を変えたときにも人間の快適さの上限である 50℃ を機器が超えないようにする必要がある。以下に必要な制御方式を提案する。

パルスチャージ制御による平均動作電圧を制御することにより、DMFC の発熱を増減させ、DMFC 温度制御を実現できると考えた。そこで、DMFC 温度 (T) に対応したパルスチャージ温度制御電圧テーブルを表 4.2 のように規定した。DMFC の基本性能は 30℃ で規定されており、 $35^\circ\text{C} > T \geq 30^\circ\text{C}$  のテーブルを基準としている。また、各パルスチャージ制御電圧 (DMFCV) において算出した DMFC 出力 (DMFCW) と DMFC 発熱 (DMFCH) も表 4.2 に示す。

DMFC 温度が 30℃ 未満の範囲では DMFC が基準以上の発熱になるように DMFC 電圧を制御し、DMFC 温度を急速に上昇させる。ただし、DMFC のセル温度 (DMFC モジュール内部) と測定点 (DMFC モジュール外部) との温度に時間差が生じることから、DMFC 温度が 45℃ 以上にオーバーシュートすることを防ぐために、最大でも DMFC 発熱が 5W 以下となるように考慮した。この結果、25℃ 未満では基準発熱の 1.8 倍、25~30℃ の範囲では 1.4 倍の発熱に設計した。

一方、35℃ 以上の温度では DMFC の出力を低減させる DMFC 電圧に制御することで DMFC 発熱を抑えて 45℃ 以上に上昇しないように制御する。35~40℃ まで範囲は基準の 5 分の 1 の DMFC 発熱に抑制し、45℃ を超えたときには出力を遮

表 4.2: パルスチャージ温度制御電圧テーブル

T[°C]	DMFCV[V]	DMFCW[W]	DMFCH[W]
$T \geq 45$	—	0	0
$45 > T \geq 42$	2.2~1.9(2.1ave)	0.0300	0.0391
$42 > T \geq 40$	2.1~1.8(2.0ave)	0.0400	0.484
$40 > T \geq 35$	2.0~1.5(1.8ave)	0.400	0.676
$35 > T \geq 30$	1.7~1.2(1.5ave)	1.20	2.67
$30 > T \geq 25$	1.6~1.1(1.4ave)	1.49	3.66
$25 > T$	1.5~1.1(1.3ave)	1.73	4.71

断してDMFC発熱を0とすることで、50℃以上へのDMFC温度上昇を防止する設計とした。

なお、前述の通り本充電器は携帯電話を使用しながら電力供給を行うことで携帯電話の使用時間を延長を目的としており、リチウムイオン電池の定電流充電領域への電力供給となる。携帯電話内部のリニアレギュレータが定電流充電制御を行うため、本充電器から携帯電話への出力電力は一定となる。

DMFC温度の測定にはNTCサーミスタを使用し、パルスチャージ制御用のマイコンに内蔵されたA/Dコンバータで電圧値を測定している。また、使用しているNTCサーミスタの抵抗値変化は0~50℃の温度範囲において±1℃以内の精度である。

#### 4.4 パルスチャージ制御システムへのパッシブ温度制御適用結果

前述した温度制御を適用し、連続動作させた実験結果を以下に示す。筐体内にDMFCモジュールを格納した実際の使用状態で評価している。なお、負荷としては実際の携帯電話を使用した。結果を図4.7に示す。

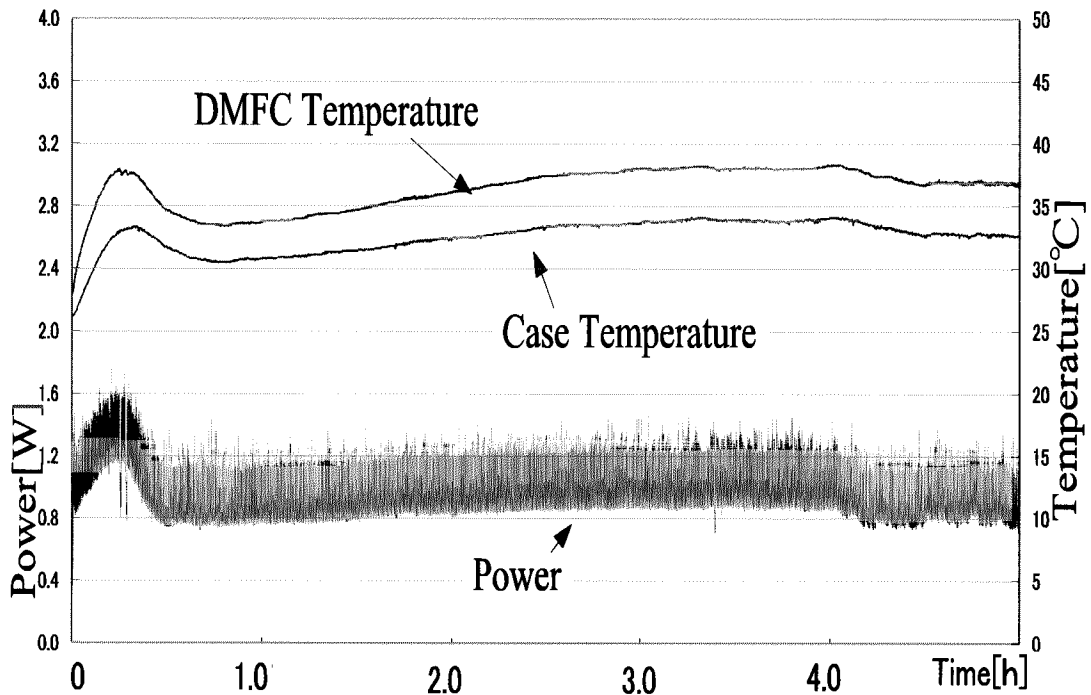


図 4.7: パッシブ温度制御実験結果

起動時には、起動時間の短縮を図るため、温度制御により  $30 > T \geq 25$  の制御電圧テーブルでDMFC制御電圧を制御することで、基準よりも発熱を増加させる制御がはたらいっており、DMFC温度が上昇している。その結果、DMFCモジュール温度は約10分で27℃から38℃に達している。その後、出力制御のオーバーシュートによる過熱を検知して  $40 > T \geq 35$  の制御電圧テーブルでDMFC電圧を低下させることで出力と発熱を下げる制御がはたらいしている。その結果、DMFCモジュール温度を35℃以下に下げることができている。なお、図4.8に示すように、サーミスタの張り付け位置はDMFCモジュール中央であったが、測定器の物理的な取

付の関係から温度の測定点はサーミスタから約3cm離れた点を測定しているため、DMFC モジュール表面の温度勾配により図4.7において、約3℃のずれが生じている。その後はほぼ、 $35 > T \geq 30$ の制御電圧テーブルの一定出力制御で次第に温度上昇し、約4時間経過後にもDMFC制御電圧を上昇させることで出力を低下させて温度を下げる制御がはたしている。この結果、5時間という長時間でも温度制御が安定して動作することが確認できた。

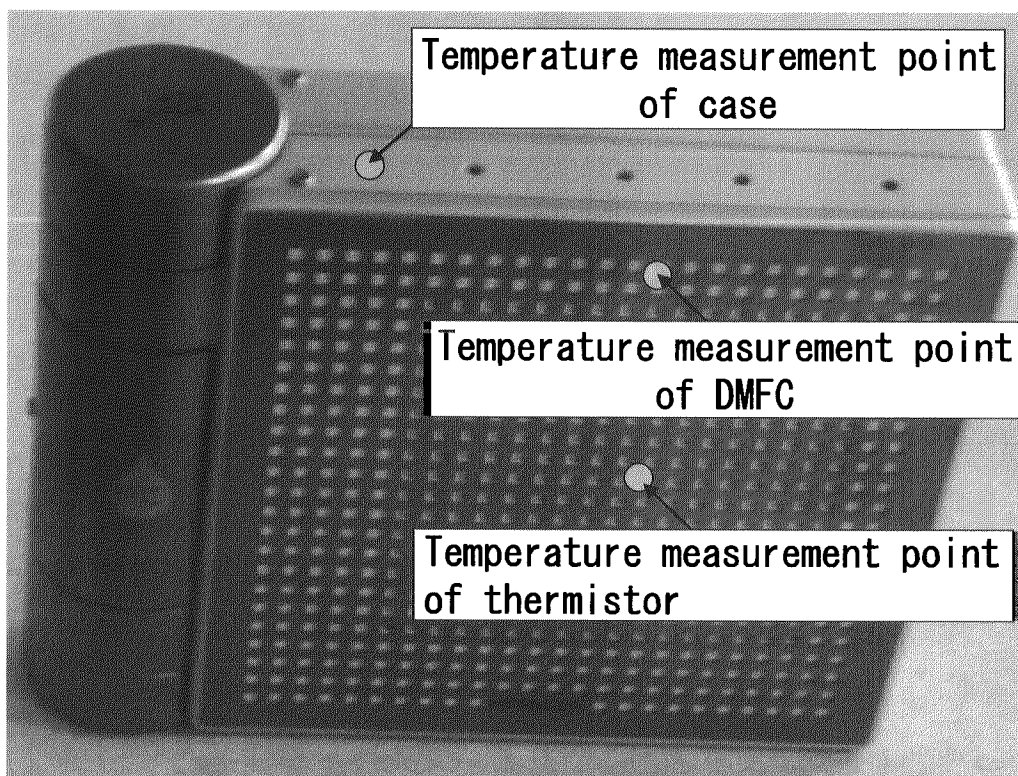


図 4.8: 各温度測定点

## 4.5 まとめ

充電器型DMFCシステムであるパルスチャージ制御システムに適用可能なパッシブ温度制御方式を提案した。

パルスチャージ制御システムは、DMFC電源の小型化の面で有利となるが、トレードオフとして放熱が不利となる。そこで本稿では、DMFCの温度特性と最大電力との関係に着目し、DMFC電圧のみで出力電力と発熱が制御可能であることを新たに見出した。本温度制御方式は、ファンを用いないパッシブ方式であり、携帯機器用の燃料電池に広く採用されている空気極パッシブ方式への適用が可能となる。さらに、パルスチャージ制御システムへ適用した温度制御電圧テーブルも示し、最後に実験により温度制御の効果が確認できた。

## 参考文献

- [1] 風間 智英, "携帯用小型燃料電池の市場動向," スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, "分冊 1, no.F2-1, pp.13, Apr.2004.
- [2] 乗松 泰明, "電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池の開発," 平成 19 年 電気学会全国大会, 分冊 4, no.4-021, pp.34, Mar.2007.
- [3] 乗松 泰明, "電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池制御システムの開発," 平成 19 年 電気学会産業応用部門大会, R1-8, 1-53, pp.355-356, Aug.2007.
- [4] 乗松 泰明, "電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール型燃料電池制御システムの開発," 電子情報通信学会誌 B, Vol. J91-B, no.2, pp.217-222, Feb.2008.
- [5] 越前谷 三夫, "携帯電話における発熱事例・熱対策と今後の動向," 熱設計・対策技術シンポジウム 2005, no.G3-1, pp.5, Apr.2005.
- [6] 藤本 浩良, "燃料電池用電解質膜," スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, "no.F2-3, pp.6, Apr.2004.
- [7] 叶田 玲彦, "モバイル機器向け燃料電池," 平成 18 年 電気学会産業応用部門大会, "分冊 2, no.2-S2-6, pp.47-48, Aug.2006.
- [8] Yasuaki Norimatsu, "Development of Direct Methanol Fuel Cell Charger Using Electric Double Layer Capacitor," Intelec2009 Energy Management & Storage 2, Es2-1, pp.1-5, Oct.2009.
- [9] Yasuaki Norimatsu, "Development of a Maximum-power-point-limiting (MPPL) Control System for a Direct Methanol Fuel Cell," IEEJ Transactions on Electrical and Electronic Engineering, Vol.6, no.5, pp.1-6, Sep.2011.
- [10] 乗松 泰明, "直接メタノール形燃料電池向け最大電力点制限 (MPPL) 制御システムの開発および実証実験," 電子情報通信学会誌 B, Vol. J94-B, no.8, pp.1-8, Aug.2011.

- [11] Chary, Ram, Pat Correia, Ravi Nagaraj, and James Song : 「Intel Low-Power Technologies Can Extend Battery Life and Improve Device Usability」 Technology@Intel magazine,September 2004,pg 1

## 第5章 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池の動特性評価方式の提案および保護方式の開発



## 5.1 まえがき

前章においては、パルスチャージ制御システムをベースとしたパッシブ温度制御方式の提案およびその実験結果について示した。

一般的な燃料電池である PEFC が効率良く発電するためには 70~80 °C 程度の動作温度が必要であり [1], 携帯用途はさらに発熱の安全性が重視される [2] [3] が, パッシブ温度制御方式を適用することで 5 時間という長時間でも DMFC モジュール温度を 40 °C 以下へ制限できることが示された。

また, DMFC を使用した携帯機器用のシステム構成は, リチウムイオン電池等の二次電池とのハイブリッド構成となっているものが各所から発表されている [4] が, 我々は二次電池よりも更に出力密度に優れた EDLC とのハイブリッドシステムであるパルスチャージ制御システムを提案している [5] [6] [7]。EDLC の充放電管理は, EDLC 電圧の監視によって実現可能であるため, 二次電池よりも簡易なシステム構成が実現できる [8]。

EDLC ハイブリッド制御に関して, 純水素型燃料電池と EDLC とのハイブリッド構成におけるキャパシタ保護制御の重要性が発表されているが [9], DMFC システムにおけるキャパシタ保護制御については報告例がない。

本章においては, 我々が開発した DMFC と EDLC をハイブリッドとした携帯機器用充電器システムの構成および制御方法, 実際の使用方法を考慮した DMFC 特性の評価方法検討および実験結果, 前記 DMFC 特性からのキャパシタ保護制御方式の提案およびその実装結果について紹介する。

## 5.2 DMFC 静特性と EDLC 耐圧の関係

前章で述べたように、パルスチャージ制御システムの構成は DMFC と EDLC の並列接続となっており、DMFC と EDLC の電圧が常に同電位となって動作する。この並列接続構成における課題は、EDLC への印加電圧の制限である。

パルスチャージ制御システムで使用している EDLC の最大耐圧は 3.3V である。しかし、EDLC への印加電圧が耐圧以下の電圧であっても、EDLC の寿命は電圧と温度に反比例して短くなることが報告されている [10]。携帯機器用システムへの適用であるため温度範囲は限定されているが、EDLC の寿命の観点からは通常使用耐圧である 2.5V よりも極力低い電圧に制限することが望ましい。

パルスチャージ制御システムの DMFC セル構成は、4 セル直列で、定格 1.5V、0.8A である。通常の前述のパルスチャージ制御で述べたように、通常使用電圧は 1.8V 以下で EDLC の耐圧以下となる設計をしている。パルスチャージ制御動作中の通常使用電圧は 1.8V 以下であるため EDLC の耐圧以下となり問題ない。しかし、低出力時(出力 0 も含む)に DMFC 電圧は高くなる特性となっているため、DMFC4 セルに EDLC を並列接続したときの電圧上昇を 2.5V 以内に制限する保護回路の検討が必要と考えた。この保護回路に必要な機能を検討するために行った DMFC の特性評価方法を以下で説明する。

設計に使用した DMFC の電圧-電流特性を以下の図 5.1 に示す。

前述の通り、EDLC 耐圧以下にするためには、DMFC 電圧を常に 2.5V 以下に保つ必要が有るが、図 5.1 のデータにおいて DMFC4 セルの開回路電圧 (OCV : Open Circuit Voltage) は 2.724V であるため、DMFC の電圧上昇を抑制する制限機能 (OCV クランプ機能) が必要である。OCV クランプ機能は、DMFC 電圧を検出して DMFC から電流を流し、電圧上昇を抑制する機能である。図 5.1 の DMFC 特性から検討すると、対象とする DMFC は 16mA で 2.04V に低下するため、OCV クランプ機能に 16mA 以上の電流を流せる能力があれば十分にセル電圧を 2.5V 以下に制限できることになる。

しかし、図 5.1 に示したような DMFC の電圧-電流特性の通常の測定方法は、DMFC から取り出す電流を増加させて、その都度低下した DMFC 電圧の安定電圧をプロットする測定を DMFC の低電流側から高電流側へ繰り返す静特性評価方法である。したがって、EDLC 耐圧以下の制限が問題となるような、DMFC から取り出す電流を低減させて、DMFC 電圧が上昇する際に発生する最大電圧を測定する動特性評価はなされていない。

例えば実際のユーザの使用状況を考えると、パルスチャージ制御システムで携帯機器へ放電しているときに、携帯機器がユーザによってパルスチャージ制御システムから切り離された場合は DMFC 電流が急峻に低減するため、EDLC の通常電圧範囲を上回って DMFC 電圧が上昇する可能性がある。

したがって、DMFC の電圧上昇の挙動を確認し、EDLC 保護機能に必要な DMFC の OCV カット電流量を設計するために、DMFC 動特性の評価実験を行った。次

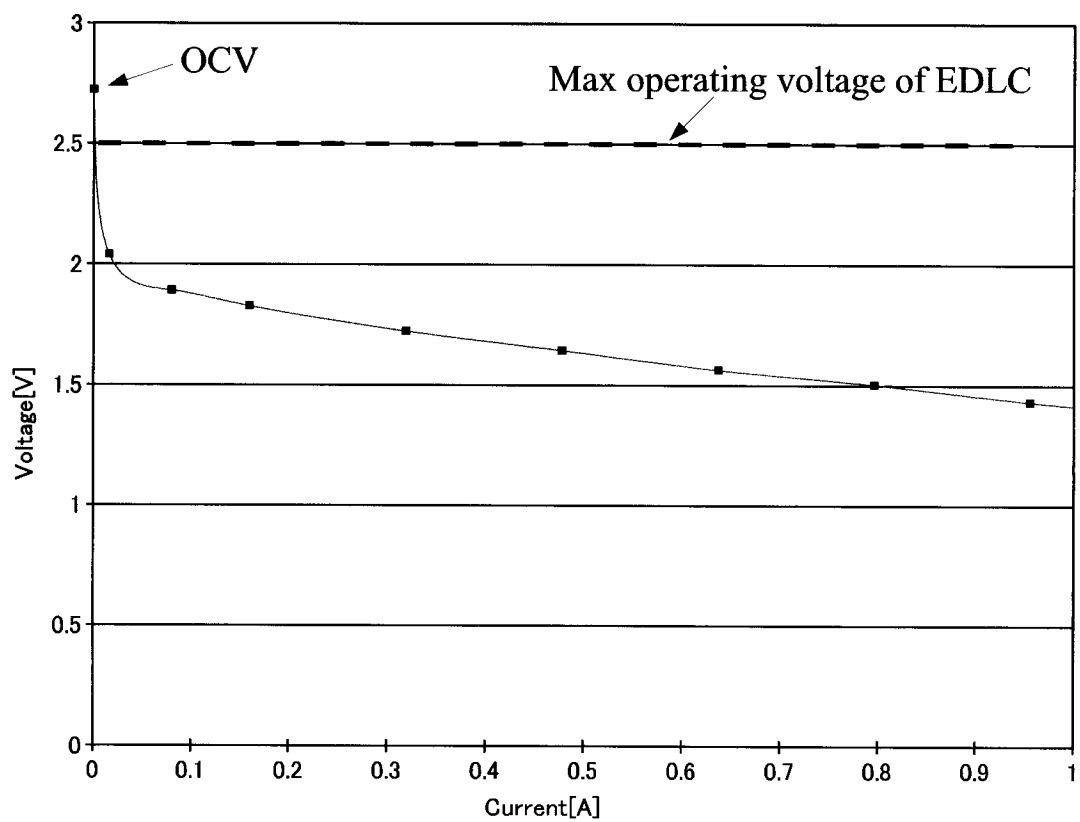


図 5.1: DMFC の電圧-電流特性と EDLC 耐圧の関係

に実験内容の詳細について述べる。

### 5.3 DMFC 動特性の特性評価実験および結果

DMFC 動特性の実験回路の構成と DMFC 電圧電流の測定パターンを図 5.2 と図 5.3 に示す。

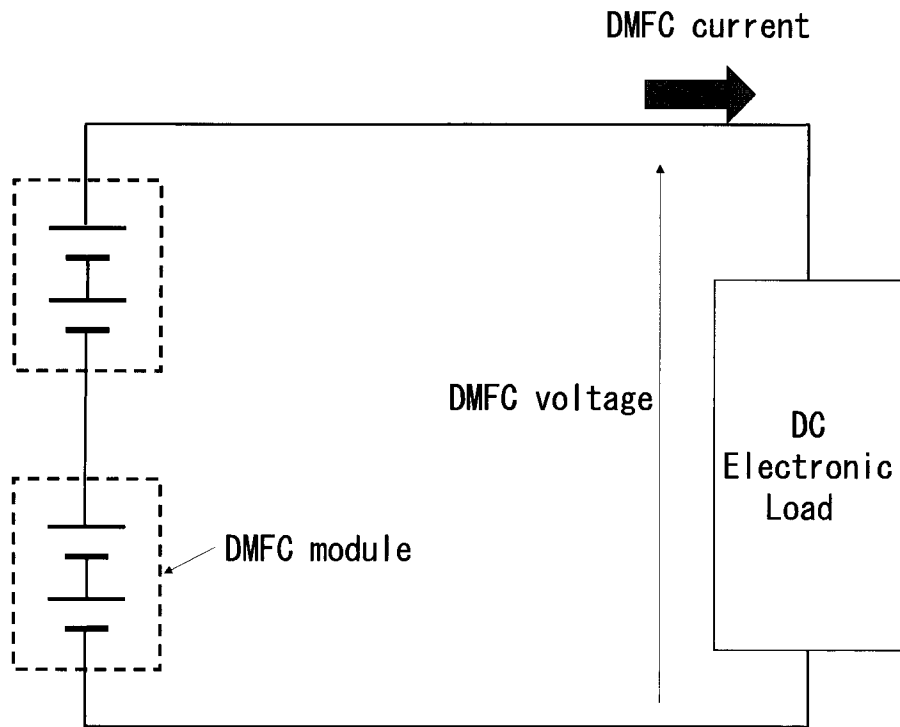


図 5.2: DMFC 動特性の実験構成

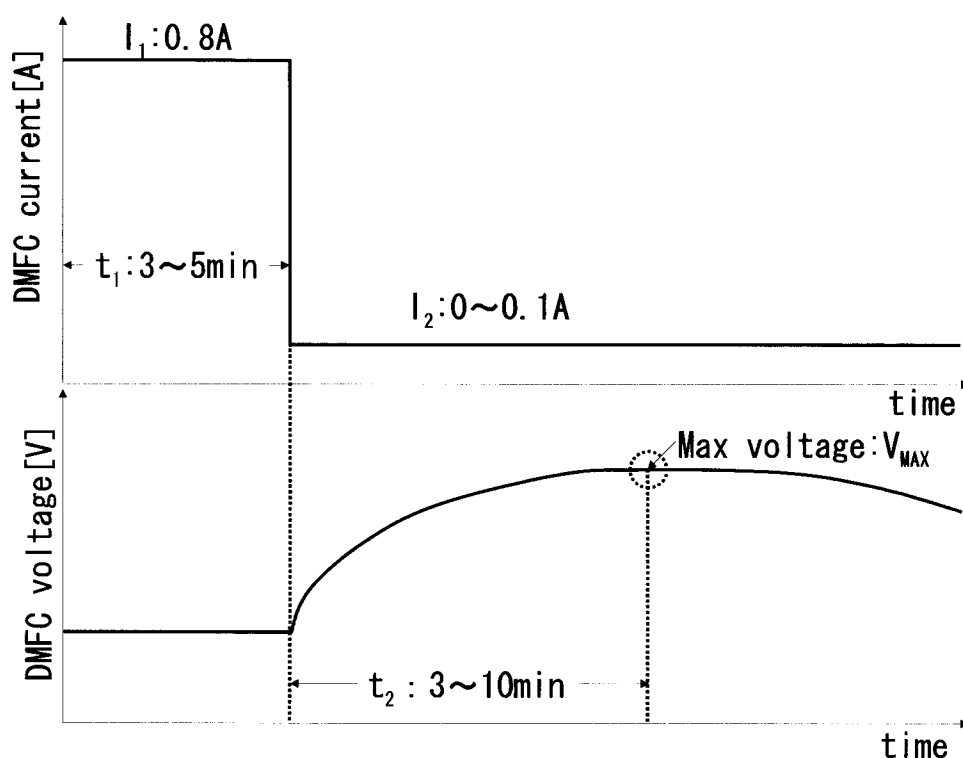


図 5.3: 負荷電流波形および DMFC 電圧波形

前述の通り、パルスチャージ制御システムは DMFC4 セルを直列接続して使用するため、2セルが直列となった状態で実装された DMFC モジュールを2つ直列接続して4セル構成とした。各 DMFC モジュールへの燃料供給は実際と同様の加圧カートリッジを接続しており、空気供給は室温 25℃ のパッシブ条件としている。

動特性を模擬するために、負荷装置で DMFC 電流を図 5.3 のように変化させて、DMFC 電圧の測定を行った。

まず、DMFC から定格電流である 0.8A ( $I_1$ ) を負荷装置に流し、時間  $t_1$  で 0~0.1A ( $I_2$ ) に減少させる。そして、その後に上昇する DMFC の最大電圧 ( $V_{MAX}$ ) を測定した。図 5.3 に示すように、DMFC 電圧の上昇は数分のオーダーで上昇してピークアウトする。

なお、DMFC から定格電流 0.8A を確実に出力できるように、準備として負荷装置で DMFC から電流を流し、DMFC モジュールの端板温度を携帯機器で使用する上限温度である 40~45℃ まで温度上昇させることで DMFC 出力を向上させている [11]。

以上の条件で測定を行った DMFC 動特性を以下の表 5.1 に示す。

表 5.1: DMFC 動特性測定結果

DMFC current $I_2$ [mA]	Max DMFC voltage $V_{MAX}$ [V]
0	2.765
10	2.647
20	2.594
30	2.539
40	2.491
50	2.454
60	2.421
70	2.381
80	2.351
90	2.312
100	2.288

さらに特性比較のため、通常の DMFC 電圧-電流特性 (静特性) と前述した負荷急減時の DMFC 過渡特性の測定結果 (動特性) を以下の図 5.4 に示す。

以上の結果から、DMFC の最大電圧  $V_{MAX}$  を 2.5V 以下に抑えることができたのは  $I_2$  が 30~40mA 以上の範囲であり、 $I_2$  を 0~30mA に低減した場合には、 $V_{MAX}$  は 2.5V 以上に上昇することが分かった。前述した DMFC 静特性の電圧-電流特性では、16mA で 2.04V であるのに対し、大きな差が出ている。

さらに、DMFC 静特性では  $I_2 = 0A$  の時の DMFC 電圧が 2.624V であったのに対して、DMFC 動特性では 2.765V となっており、低電流側で DMFC 電圧が上昇する傾向となることが分かる。

前述したように、通常の DMFC 電圧-電流特性の測定は DMFC が OCV の状態から高電流密度側に DMFC 電流をシフトさせて、その都度 DMFC 電流値における DMFC の安定電圧を測定するが、高電流側から低電流側に電流をシフトさせた動特性は、図 5.4 に示されるようにまったく異なった特性となることが分かった。

前述の通り、数分以上の時間での電圧上昇であるため、DMFC の集電板やセル間の配線などの DMFC の実装に起因したインダクタンス成分の挙動とは異なる。DMFC の発電は電荷の移動のみではなく、電解質膜内をプロトンが透過する。そのプロトンの移動に伴って水も移動する等の物理的な動きがこのような数分以上の電圧上昇動作に作用していると考えられるが [12]、今後詳細に調べる必要があると思われる。

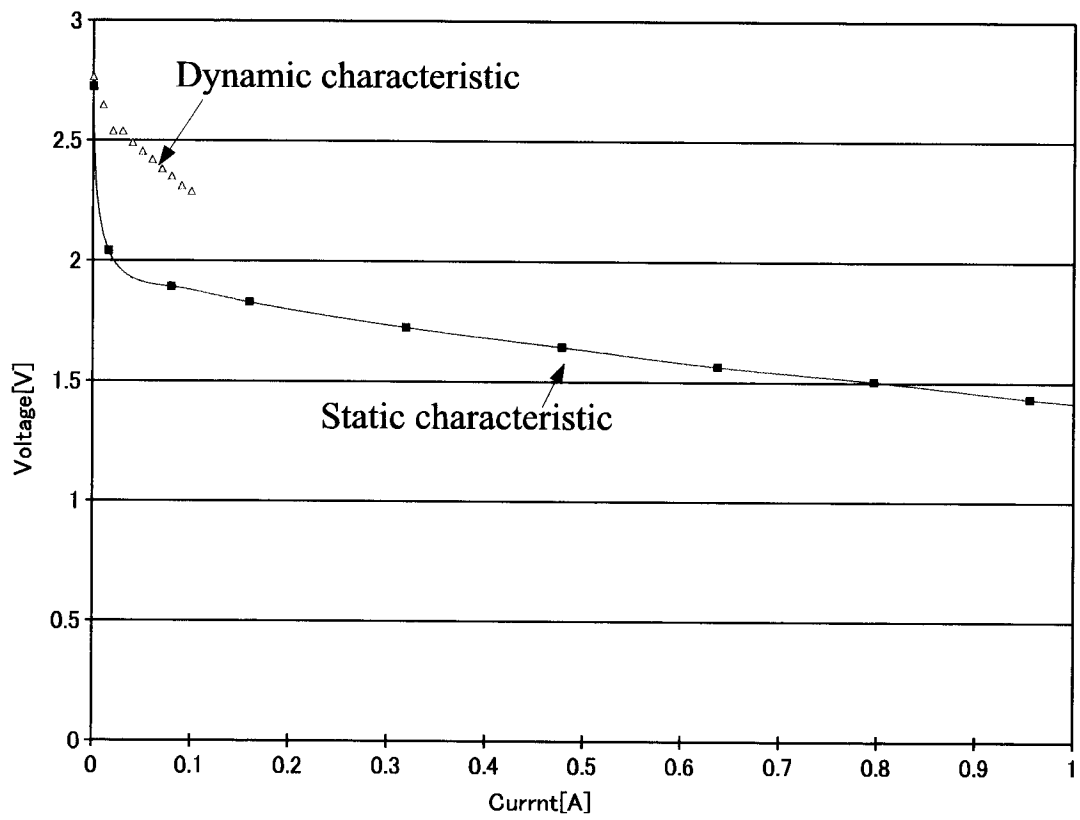


図 5.4: DMFC 静特性と DMFC 動特性の電圧-電流特性比較

## 5.4 パルスチャージ制御システムへのOCVクランプ方式の適用

以上のDMFC動特性の実験結果から提案した、EDLC保護機能であるOCVクランプ機能を搭載した回路図および制御フローを図5.5と図5.6に示す。

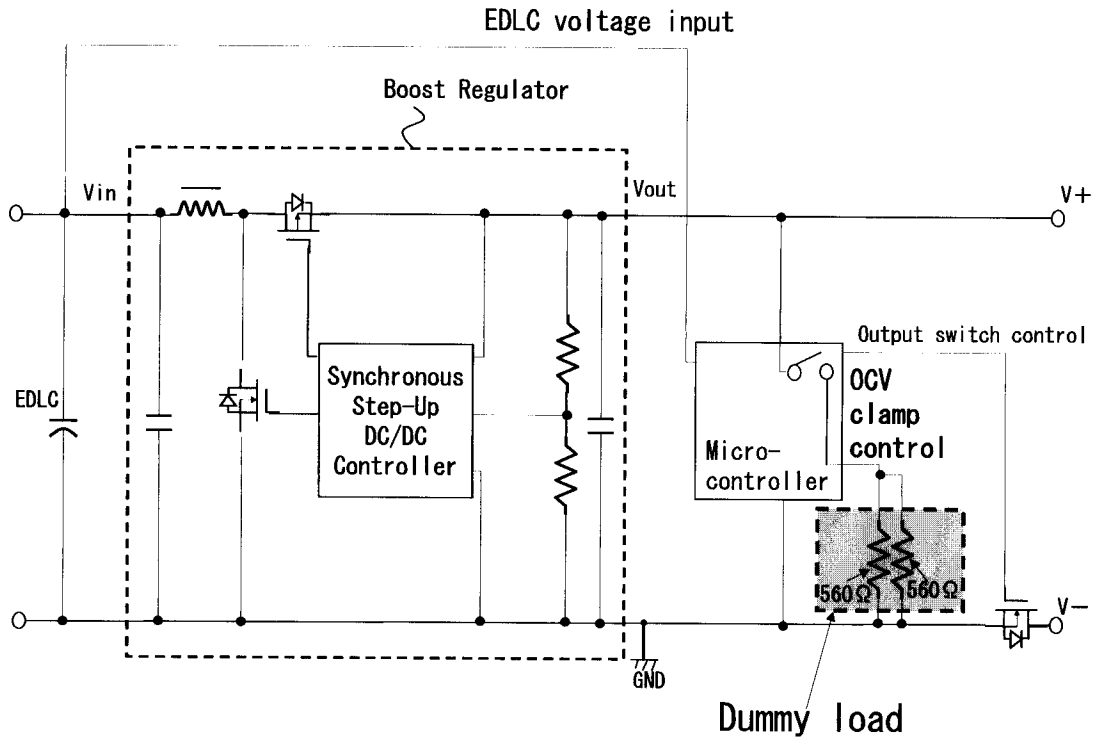


図 5.5: 提案 OCV クランプ機能を搭載したパルスチャージ制御システム回路図

前述の実験結果から、EDLCの電圧を2.5V以下に抑えるためには40mA以上の電流をDMFCから出力するOCVクランプ機能が必要であることが分かった。EDLCの電圧を確実に2.5V以下に抑えるために、OCVクランプ制御に必要な電流値の約2倍である60mAでOCVクランプ機能を設計した。

上記設計を満たすためには、ダミー負荷として $2.5V \times 60mA = 150mW$ の許容損失を備えた抵抗が必要となる。許容損失がより小さい抵抗を適用できるように、昇圧型DC/DCコンバータの変換損失を利用することを考えた。DC/DCコンバータは、低負荷時の効率が低下する傾向となるため、OCVクランプ制御に必要な電力範囲では、低い変換効率がOCVクランプ電力に利用できる。



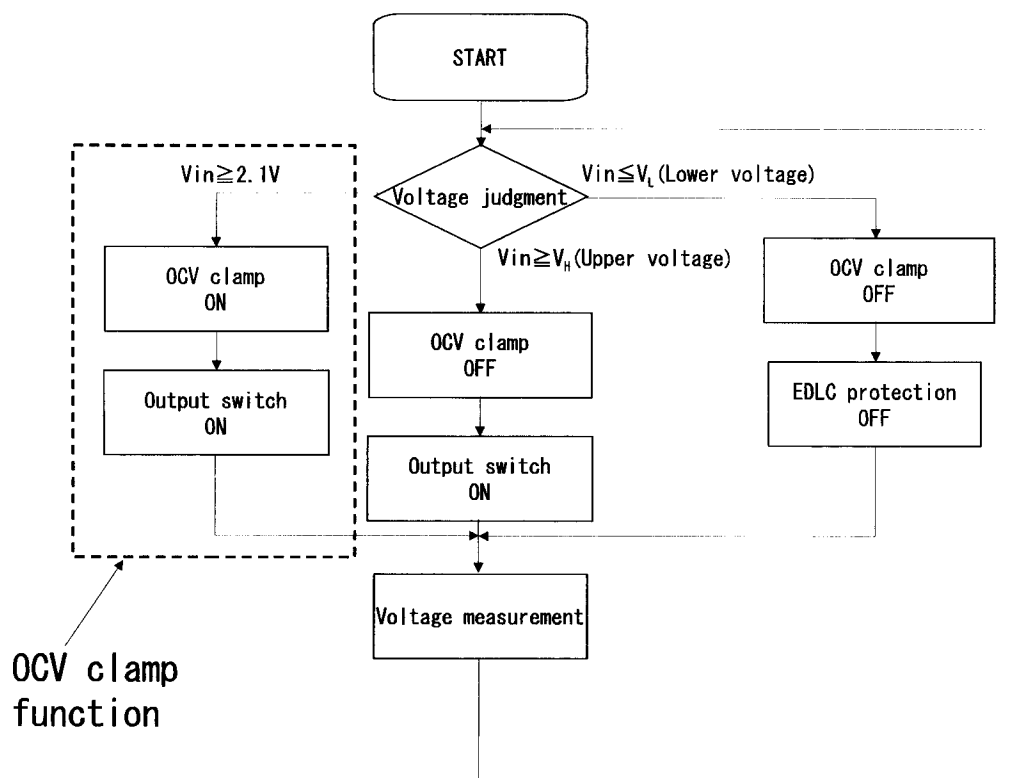


図 5.6: 提案 OCV クランプ機能を搭載したパルスチャージ制御フローチャート

以上の検討から、図 5.5 に示すように、本構成では OCV クランプ機能であるダミー負荷を DC/DC コンバータの出力端  $V_{out}$  に設けている。 $V_{out}$  は、USB 電圧と同じ 5V である。そして、DC/DC コンバータの出力端に抵抗を接続して、 $V_{in}$  から 60mA 以上流れる抵抗値を実験的に求め、ダミー負荷抵抗は 280  $\Omega$  とした。この設計により、ダミー負荷抵抗の許容損失は  $\frac{5V \times 5V}{280 \Omega} = 89.3mW$  となり、抵抗の許容損失を 0.1W 以下に低減することができた。本構成では、定格 0.05W、560  $\Omega$ 、1608 サイズのチップ抵抗を 2 並列にして用いている。

図 5.5 に示すように、提案した OCV クランプ機能はパルスチャージ制御用マイコンの出力端子を利用している。この出力端子にダミー負荷を接続して、EDLC の電圧が上昇した場合にはマイコンの出力端子を High にして、ダミー負荷に電流を流す回路構成としている。

マイコンには、図 5.6 のパルスチャージ制御フローチャートに示すように、EDLC 電圧が 2.1V 以上になった時にダミー負荷の接続された出力端子を High、それ以下の電圧で出力端子を Low にする機能を追加して持たせている。定常動作時にはダ

ミー負荷には電流が流れないため、定常時は損失が無い。また、マイコンの出力端子で制御するため、追加部品はダミー負荷抵抗のみとなる。

## 5.5 まとめ

充電器型DMFCシステムであるパルスチャージ制御システムに適用可能なEDLC保護方式であるOCVクランプ方式を提案した。

パルスチャージ制御システムは、EDLCをハイブリッドとすることによってDMFC電源の小型化の面で有利となるが、EDLC保護のためにEDLC耐圧以下へDMFC電圧をクランプする必要がある。そこで本稿では、従来からDMFCの特性を示すのに使われている電圧-電流特性の測定方法が静特性の評価である点に着目し、DMFC電圧の負荷低減時の動特性の評価が必要であることを新たに提案した。

検討の結果、負荷急減時にDMFCセル電圧が静特性の電圧値を超えて上昇する現象を新たに把握することができた。そして、本特性を解決するOCVクランプ方式を提案し、これに耐え得る低損失なOCVクランプ回路を試作した。

本報告に述べるパルスチャージシステムの追加機能は、出力密度向上のためDMFCに並列接続しているEDLCの保護制御という、実用化に不可欠な技術である。

## 参考文献

- [1] 藤本 浩良, "燃料電池用電解質膜," スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, "no.F2-3, pp.6, Apr.2004.
- [2] 越前谷 三夫, "携帯電話における発熱事例・熱対策と今後の動向," 熱設計・対策技術シンポジウム 2005, no.G3-1, pp.5, Apr.2005.
- [3] Chary, Ram, Pat Correia, Ravi Nagaraj, and James Song :「Intel Low-Power Technologies Can Extend Battery Life and Improve Device Usability」Technology@Intel magazine,September 2004,pg 1
- [4] 風間 智英, "携帯用小型燃料電池の市場動向," スイッチング電源・バッテリーシステムシンポジウム 2004, "分冊 1, no.F2-1, pp.13, Apr.2004.
- [5] 乗松 泰明, "電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池の開発," 平成 19 年 電気学会全国大会, 分冊 4, no.4-021, pp.34, Mar.2007.
- [6] 乗松 泰明, "電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池制御システムの開発," 平成 19 年 電気学会産業応用部門大会, R1-8, 1-53, pp.355-356, Aug.2007.
- [7] 乗松 泰明, "電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール型燃料電池制御システムの開発," 電子情報通信学会誌 B, Vol. J91-B, no.2, pp.217-222, Feb.2008.
- [8] 木下 繁則, "電気二重層キャパシタの性能特性に関する最適評価法の研究 (2)," 平成 19 年電気学会産業応用部門大会, R1-8, 1-53, pp.357-360, Aug.2007.
- [9] 佐藤 健児, "電気二重層キャパシタシステムの燃料電池自動車への応用," 信学技報, Vol.104, No.576, pp.65-70, Jan.2005.
- [10] Menahem Anderman, "Could ultracapacitors become the preferred energy-storage device for future vehicles?," AABC05, Mar.2006
- [11] 叶田 玲彦, "モバイル機器向け燃料電池," 平成 18 年 電気学会産業応用部門大会, "分冊 2, no.2-S2-6, pp.47-48, Aug.2006.

- [12] Yasuaki Norimatsu, "Development of Direct Methanol Fuel Cell Charger Using Electric Double Layer Capacitor, " Intelec2009 Energy Management & Storage 2, Es2-1, pp.1-5, Oct.2009.

## 第6章 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向け出力電力量増加制御方式の開発

## 6.1 まえがき

前章までにおいて、DMFCとEDLCのハイブリッド制御システムであるパルスチャージ制御システムを提案し [1] [2] [3], DMFCモジュール温度を定温時には昇温し, 45℃近傍では制限するパッシブ温度制御方式 [4], PEFCとは異なる [5]DMFC電圧の跳ね上がりによるEDLC電圧保護を目的としたOCVクランプ方式 [6]を提案した。

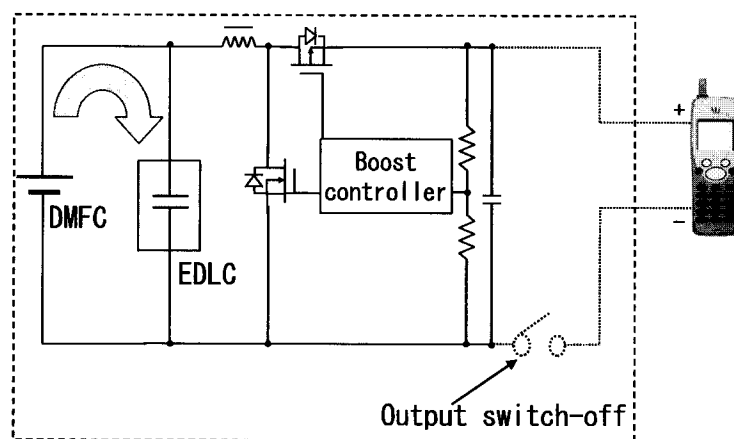
EDLCをハイブリッドとして使用することで電圧制御が可能となり [7], EDLCと同電位であるDMFC電圧によってDMFCの出力と発熱を制御可能であることが分かった [8] [9]。

DMFCはリチウムイオン二次電池を凌駕する高エネルギー密度が期待されており, 燃料のエネルギーをより多くの電力量に変換する必要がある。前述のように, DMFC電圧により損失である発熱が規定できることから, 制御方法によって出力可能なDMFC電力量が異なる可能性が考えられる。

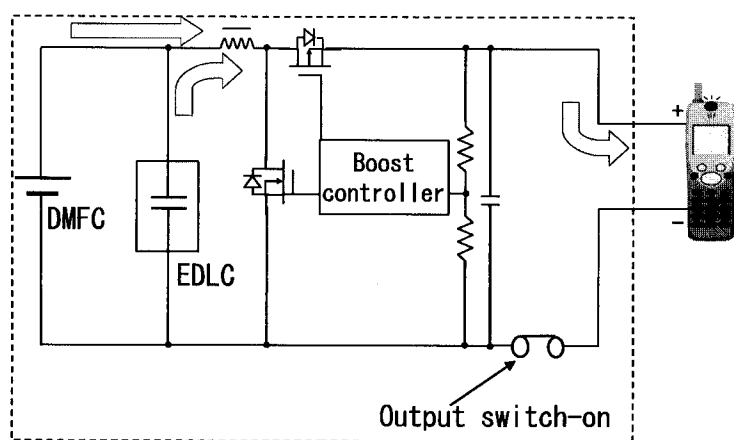
本稿においては, 我々が開発したDMFCとEDLCをハイブリッドとした携帯機器用充電器システムの構成および制御方法, DMFC特性から提案した出力電力量増加制御方式の詳細, 実際の比較実験結果について示す。最後に, 実験結果から得られた効果と本制御で得られる理論効果とを比較し, 本制御で狙いとした電圧及び温度の制御による効果を検証する。

## 6.2 パルスチャージ制御システムとその課題

前章で述べたように、DMFC小型化の課題を解決するハイブリッドシステムとして、二次電池よりも出力密度に優れたEDLCとのハイブリッドシステムであるパルスチャージ制御システムを本稿では使用している。



(a) Charge mode



(b) Discharge mode

図 6.1: パルスチャージ制御動作

まず、提案したパルスチャージ制御システムについて説明する。パルスチャージ制御システムの構成および制御動作を図 6.1 に示す。パルスチャー



ジ制御システムは、ポンプやファンを使用しないパッシブ型の DMFC を使用した充電器型電源システムであり、携帯電話の充電のために定格 3W を出力する必要がある。前記定格に対してパルスチャージ制御システムは、携帯電話の充電端子にパルスの 3W を出力することで、DMFC から出力された定格 3W より小さい平均 1W を供給する電源であることが特徴である。

制御動作は、以下のルーチンとなる。

- ① 図 6.1(a) に示すように出力スイッチを OFF し、DMFC からハイブリッド電源 (EDLC) へ充電する。
- ② EDLC の電圧が設定された上限電圧以上になると制御システムが充電 (a) から放電 (b) に切り替わる。
- ③ 図 6.1(b) に示すように出力スイッチを ON にし、充電された EDLC と DMFC から携帯電話に 3W の出力を供給する。
- ④ EDLC の電圧が設定された下限電圧以下になると、制御システムが放電 (b) から充電 (a) に切り替わる。

以上の制御動作を (a) を 6 秒間、(b) を 3 秒間のように繰り返し、3W を  $\frac{1}{3}$  の周期で給電して平均 1W を出力する。

ハイブリッド電源は、出力密度に優れた EDLC を使用している。構成は 4 直列セルの DMFC と 1 セルの EDLC の並列接続となっており、DMFC と EDLC の電圧が常に同電位となって動作することが特徴である [3]。

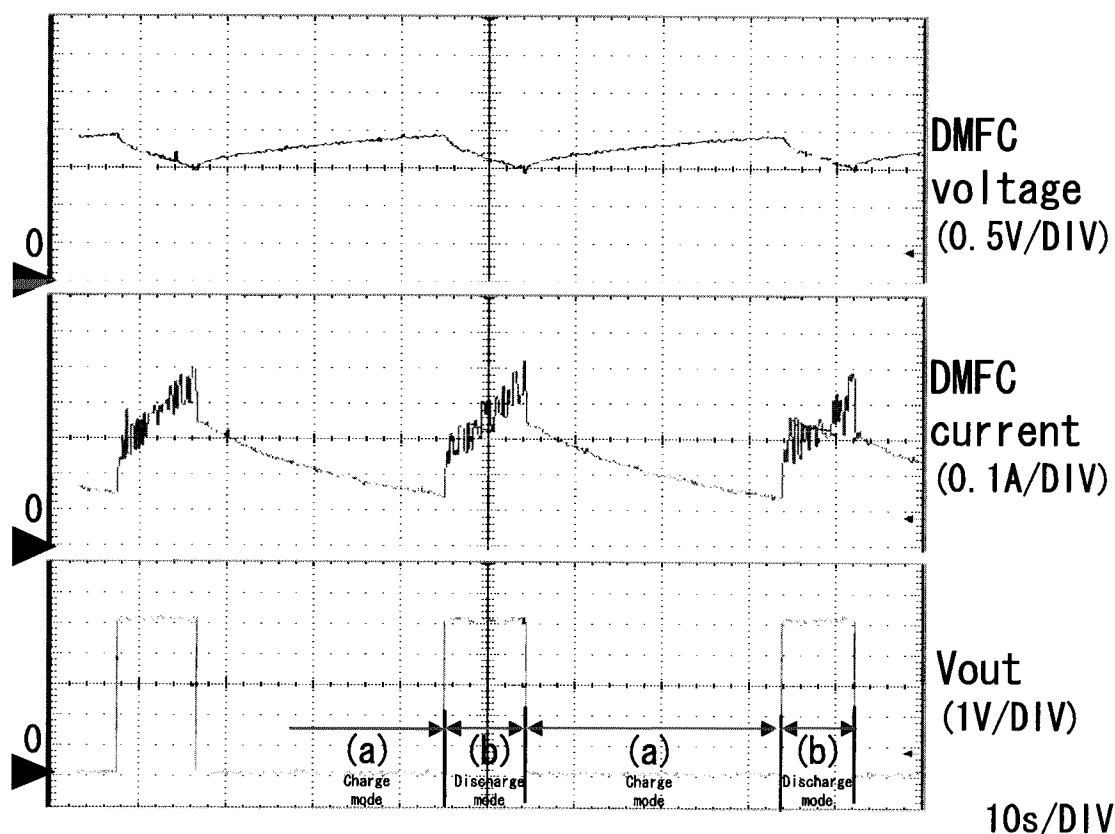


図 6.2: パルスチャージ制御波形

図 6.2 にパルスチャージ制御の電圧・電流の動作波形の一例を示す。携帯電話への供給電力である  $V_{out}$  は断続的に数秒程度の給電時間となっているが、DMFC は連続的に出力していることが特徴である。本充電器は携帯電話を使用しながら電力供給を行うことで携帯電話の使用時間を延長を目的としており、リチウムイオン電池の定電流充電領域への電力供給となる。したがって、リチウムイオン電池の定電圧充電時間を短縮するために、リチウムイオン電池の耐圧以上に充電時のセル電圧を上昇させてパルスの充電するリチウムイオン電池のパルス充電とは異なる充電方法である。

また、DMFC からの出力電力が小さい場合でも電気二重層キャパシタのみの放電で携帯電話へ電力供給が可能であるため、DMFC モジュールは携帯電話の平均電力を出力できる容量があれば十分であり、小型化が可能となる。携帯電話の平均電力としては連続通話時の電力があり、現状 600mAh のリチウムイオン電池を搭載した携帯電話の連続通話時間は 3 時間以上である。つまり、平均電流は 200mA 以下となり、充電器の出力電圧 5.0V から、平均 1W 出力で充電器を設計できる。したがって、充電器出力を 3W から 1W に低下できることで、特に DMFC モジュー

ルの小型化により DMFC 電源体積の小型化も実現できる。

さらに、リチウムイオン電池をハイブリッドとした場合は、リチウムイオン電池が低充電状態となった時に使用者が最低数分以上は充電しなければ充電器として使用できないが、電気二重層キャパシタハイブリッドにした場合は、DMFC 電力のみで1分以内に電気二重層キャパシタを充電可能であるため、使用者が外部電力で充電する必要は無く、燃料供給のみですぐに利用可能という燃料電池の利点も満足する。

パルスチャージ制御システムをより高効率とし、出力電力量を増加させるためには以下の3つの改良が必要であると考えた。

- DMFC の高効率制御
- EDLC の改良
- DC/DC コンバータの高効率化

本稿では、以上の3つの特徴技術の中で特に出力電力量増加への効果が大きい DMFC の高効率制御の詳細について述べる。

### 6.3 DMFC 高効率制御による出力電力量増加制御の検討

DMFC 出力特性における実際の出力と損失の関係を図 6.3 に示す。

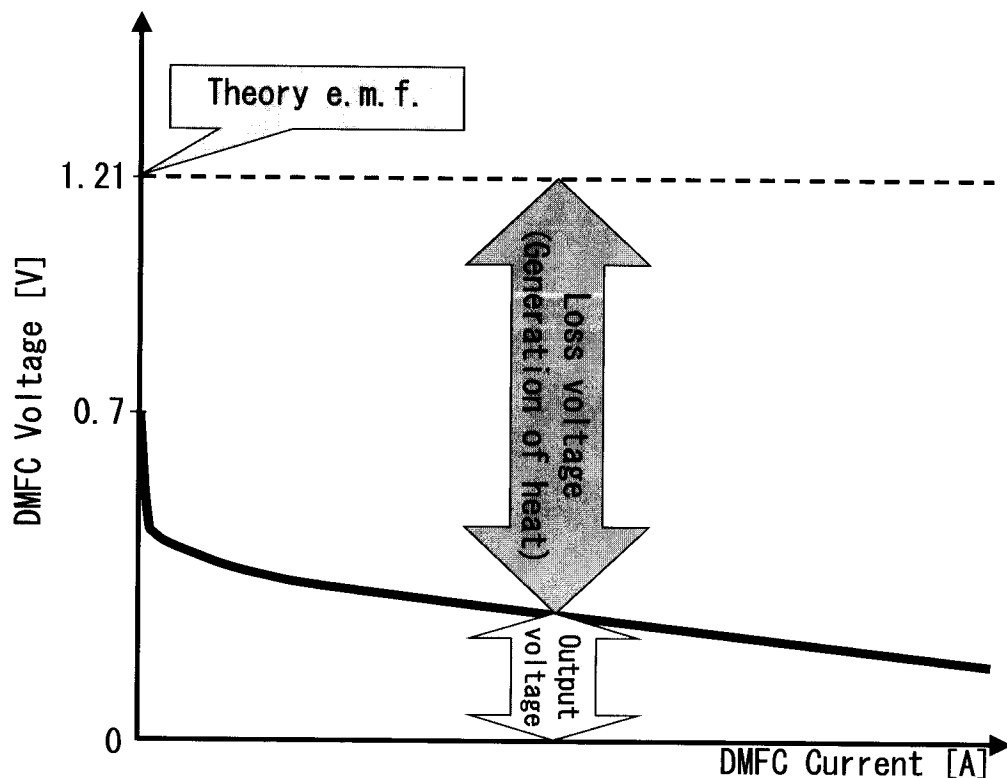


図 6.3: DMFC 出力と損失の関係

DMFC の理論最大電圧は 1.21V であるが、アノードにおける活性化過電圧、燃料であるメタノールがアノードからカソードへ透過するメタノールクロスオーバーによるカソード電位の低下、電解質膜内のプロトン移動抵抗、集電板抵抗等の要因により、実際に出力として使用できる電圧は 0.4~0.3V 程度となる。本システムで使用するパッシブ型 DMFC は発電に必要な補機電力がゼロであるため、出力電力効率は DMFC の発電効率のみとなる。DMFC 電圧を  $V_{DMFC}[V]$ 、DMFC 電流を  $I_{DMFC}[A]$  とすると DMFC 発電効率  $\eta_{DMFC}[\%]$  は以下の式で表すことができる。

$$\begin{aligned} \eta_{DMFC} &= \frac{V_{DMFC} \cdot I_{DMFC}}{1.21 \cdot I_{DMFC}} \\ &= \frac{V_{DMFC}}{1.21} \end{aligned} \quad (6.1)$$

つまり、DMFC 発電効率は DMFC の理論電圧と実使用電圧の比で決まり、例えば DMFC の実使用電圧が 0.3V の場合は、 $\frac{0.3V}{1.21V} \times 100 = 24.8\%$  である。したがって、DMFC の出力電力量を増加するには、パルスチャージ制御の上限電圧と下限電圧をより高い電圧に設定することで DMFC 実使用電圧を上昇させることが望ましいが、図 6.3 の DMFC 出力特性から分かるように DMFC 電流の低下によって、DMFC 出力電力が大きく低下する。

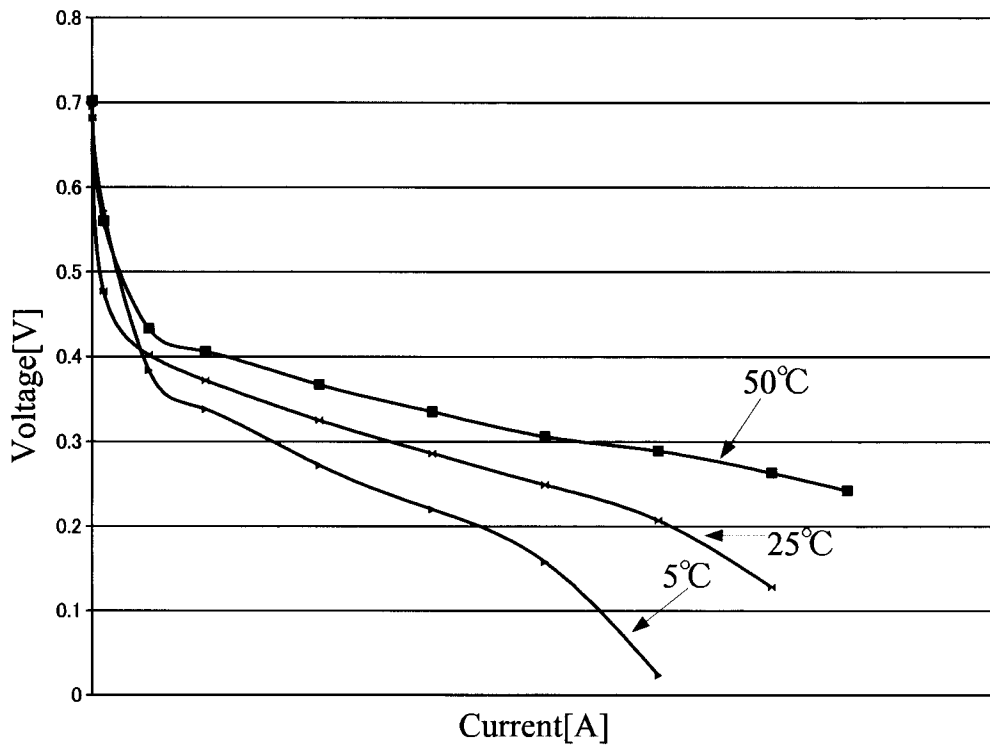


図 6.4: DMFC の温度特性

この課題を解決するために、DMFC の温度特性に着目した。図 6.4 にパッシブ型 DMFC の温度特性を示す。DMFC は温度が上昇することでアノードにおける活性化過電圧が小さくなり、同電流におけるセル電圧が上昇するため、セル電圧を高くしても出力を維持することができる。したがって、使用開始時のような DMFC 低温時には DMFC 発電効率を低下させて DMFC の温度上昇を促進し、DMFC 温度が安定した定常時には DMFC 発電効率の高い出力制御を行う出力電力量増加制御を DMFC の電圧制御で実現できると考えた。

パルスチャージ制御を改良した出力電力量増加制御の制御テーブルを表 6.1 に示す。DMFC モジュール温度が  $T[^\circ\text{C}]$ 、DMFC 制御電圧が  $V[\text{V}]$ 、DMFC 発熱が  $H[\text{W}]$ 、DMFC 出力電力効率が  $\eta [\%]$  である。

表 6.1: 出力電力量増加制御テーブル

T[°C]	V[V]	H[W]	$\eta$ [%]
$T \geq 45$	—	0	—
$45 > T \geq 42$	2.2~1.9(2.1ave)	0.0391	43.4
$42 > T \geq 40$	2.1~1.8(2.0ave)	0.484	41.3
$40 > T \geq 35$	2.0~1.5(1.8ave)	0.676	37.2
$35 > T \geq 30$	1.7~1.2(1.5ave)	2.67	31.0
$30 > T \geq 25$	1.6~1.1(1.4ave)	3.66	28.9
$25 > T$	1.5~1.1(1.3ave)	4.71	26.9

2章で紹介したパルスチャージ制御システムで監視し、制御している DMFC 電圧情報 V[V] に加えて、DMFC モジュールの温度 T[°C] も監視することで制御を行う。前述の通り、DMFC 電圧 V[V] を制御することで直接 DMFC の発電効率  $\eta$  [%] を制御できることが特徴である。また、定常時と想定している 30~35 °C で約  $\frac{1}{3}$  が出力可能となる効率となるように制御テーブルを設定している。

DMFC 温度が 30 °C 未満の範囲では DMFC が定常時以上の発熱になるように DMFC 電圧を制御し、DMFC 温度を急速に上昇させる。ただし、DMFC のセル温度 (DMFC モジュール内部) と測定点 (DMFC モジュール外部) との温度伝搬に時間差が生じることから、DMFC 温度が 45 °C 以上にオーバーシュートすることを防ぐために、最大でも DMFC 発熱が 5W 以下となるように考慮した。米 Intel 社では、表面積約 300cm<sup>2</sup> の小型の携帯機器の場合、平均的な条件下で放散可能な熱は 5W 以下であるとしている [10]。この結果、25 °C 未満では基準発熱の 1.8 倍、25 ~30 °C の範囲では 1.4 倍の発熱に設計した。

一方、35 °C 以上の温度では DMFC の出力を低減させる DMFC 電圧に制御することで DMFC 発熱を抑えて 45 °C 以上に上昇しないように制御する。35~40 °C の範囲は定常時の 4 分の 1、40~42 °C の範囲は定常時の 5 分の 1、42~45 °C の範囲はほぼ 0 となる定常時の 2 % 以下に DMFC 発熱に抑制し、45 °C を超えたときには出力を遮断して DMFC 発熱を 0 とすることで、50 °C 以上への DMFC 温度上昇を防止する設計とした。

また、EDLC への印加電圧が耐圧以下の電圧であっても、EDLC の寿命は電圧と温度に反比例して短くなることが報告されているため [11]、パルスチャージ制御システムで使用している EDLC の最大耐圧は 3.3V であるが、定常時と想定している 30~40 °C の制御テーブルの電圧を 2.0V 以下としている。

## 6.4 実験および考察

### 6.4.1 実験条件

以上で提案した出力電力量増加制御の効果を確認するために、以下の3条件で出力電力を測定し、出力電力を積算することで各制御および条件による出力電力量増減の検証を行った。

- 定温・定電流制御
- 定温・出力電力量増加制御
- 変温・出力電力量増加制御

定電流制御を適用した条件では、DMFC モジュール出力端を直接負荷装置に接続しており、DMFC モジュールの出力を直に測定している。したがって、本測定条件では DC/DC コンバータが無い。

出力電力量増加制御を適用した条件では、DMFC モジュールを出力電力量増加制御を行う DC/DC コンバータの入力端に接続し、DC/DC コンバータの出力端に負荷装置を接続し、3W と 0W が断続的に出力される。

上記条件全て恒温槽内で実験を行っており、環境は気温 20℃、湿度 0% に調整している。DMFC 温度一定の条件の場合は、試験中に恒温槽を動作させて DMFC 温度も環境温度と同じ温度となるようにしており、変温 (DMFC 温度変動) の条件の場合は試験中に恒温槽を止めて DMFC 温度上昇が可能な状態としている。

DMFC モジュールへの燃料供給条件は、約 15cc の燃料を注入して、DMFC モジュール内に約 8cc が残って余りを排出する全燃料取替え式としている。なお、注入した燃料濃度は 20wt % である。

## 6.4.2 定温・定電流制御の実験

まず、「定電流制御，DMFC 温度一定，DC/DC コンバータ無し」の条件で行った実験について説明する。

DMFC モジュールを 4 セル直列に接続して，定電流制御時の出力電力量を測定した。本測定は DC/DC コンバータを接続しないため，一般的な DC/DC コンバータ効率 80 % で平均 1W 出力相当となる 1.25A (1.25W 相当) の定電流負荷で DMFC モジュール出力，DMFC 温度，DMFC モジュール内圧力を測定した。測定結果を以下の図 6.5 に示す。なお，DMFC モジュール電圧 = 0V を終了条件とした。本評価の結果，図 6.5 の出力を積分した出力エネルギー量は 0.981Wh で，連続駆動時間は 3196 秒となった。

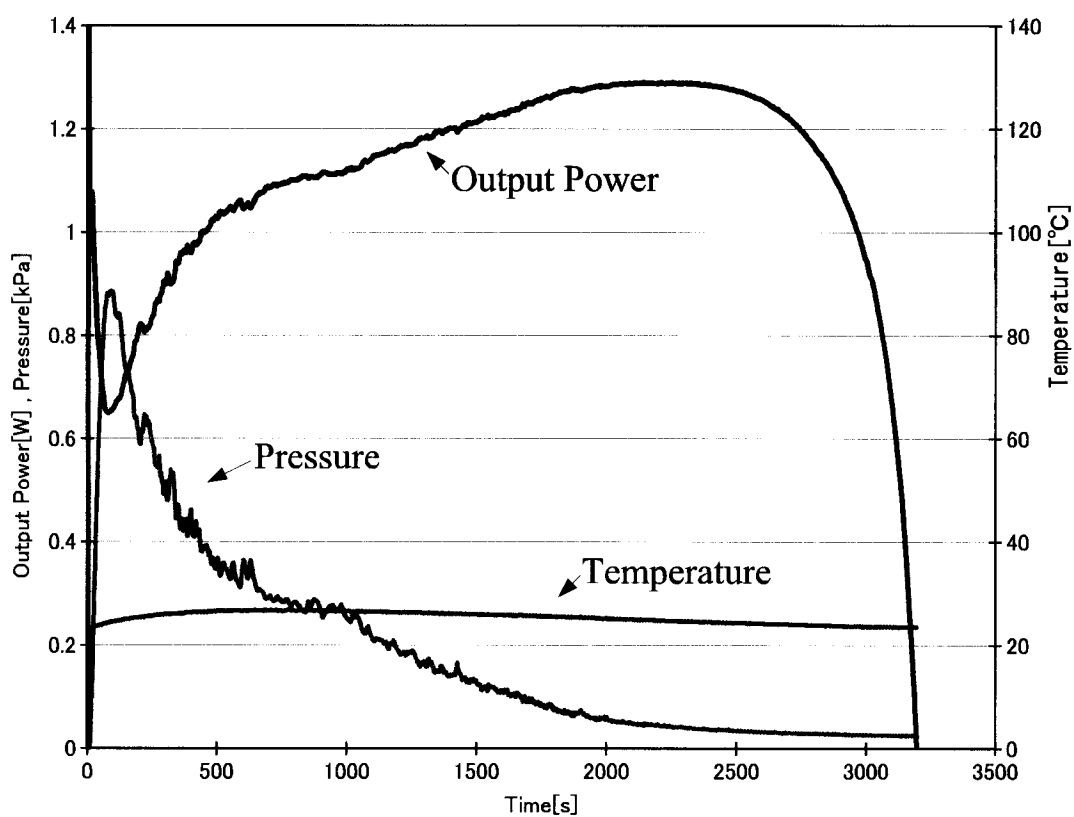


図 6.5: 定電流制御による出力・温度・圧力推移 (恒温槽動作)



### 6.4.3 定温・出力電力量増加制御の実験

次に、「出力電力量増加制御，DMFC 温度一定，DC/DC コンバータ有り」の条件で行った実験について説明する。

前測定と同条件の4セル直列のDMFCモジュールに出力電力量増加制御基板を接続し，基板の出力電力・DMFCモジュール温度・DMFCモジュール内圧を測定した結果を以下の図6.6に示す。なお，出力は3Wと0Wの断続となるため，60秒間の平均で示している。DMFCモジュール温度は最大21.9℃で恒温槽の動作により環境温度20℃に近い温度に保たれている。連続駆動時間は7300sとなり，出力エネルギー量は1.28Whとなった。

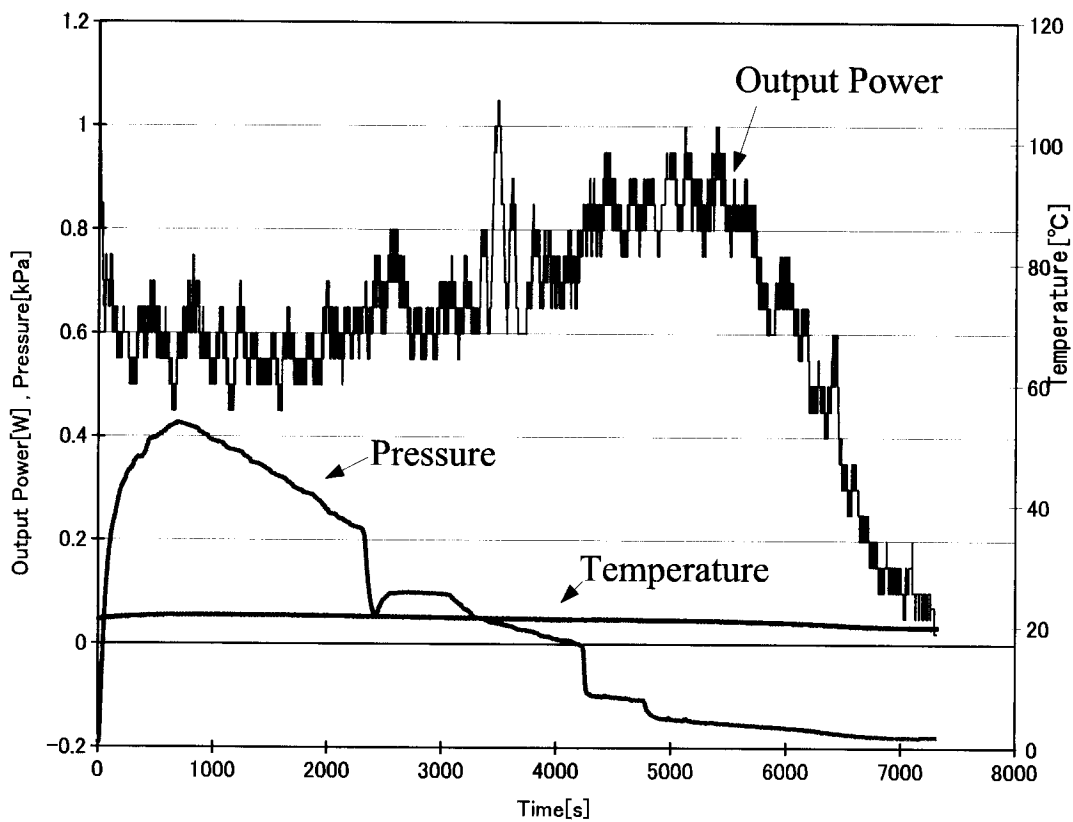


図 6.6: パルスチャージ制御による出力・温度・圧力推移 (恒温槽動作)

#### 6.4.4 出力電力量増加制御の効果

以上の2つの条件の実験結果から、定電流評価と比較して出力電力量増加制御による電力量増大効果は  $\frac{1.28\text{Wh}}{0.981\text{Wh}}$  から 1.30 倍となる。

電力量増加制御の効果は2つあり、DMFCの定電圧制御による発電効率制御とDMFCモジュール内燃料の消費延長であると考えられる。

まず、DMFCの定電圧制御による発電効率制御の効果について説明する。出力電力量増加制御はある上限電圧と下限電圧で充放電を繰り返すため、DMFC電流の大小に依存せずDMFC電圧は必ず表6.1の出力電力量増加制御テーブルにおける電圧範囲となる。本実験における動作電圧範囲はDMFCモジュール温度が25℃未満であるため、1.5V~1.1V(平均1.3V)となる。定電流制御におけるDMFCモジュールの平均出力電圧は約0.89Vであった。

DMFCの出力効率はDMFC電圧に比例するため、使用電圧の比が制御の効果となる。したがって、本効果によるDMFC出力エネルギー量の増加は  $\frac{1.3\text{V}}{0.89\text{V}}$  から 1.46 倍となる。

次に、DMFCモジュール内燃料の消費延長効果について説明する。出力電力量増加制御においては、前述のように電気二重層キャパシタに電荷が蓄積されさえすれば、パルス出力が可能となる。つまり、出力電力量増加制御テーブルのDMFC電圧におけるDMFCの出力可能な電流が定格電流より下回っても動作可能であり、DMFC電流が0Aとならない限りパルス出力が可能となる。したがって、DMFCタンク内燃料濃度がDMFC定格電流を維持できない濃度からの駆動延長効果が可能となる。

DMFCタンクに最初に充填される燃料は約8cc、20wt%であることから、燃料中のメタノールは  $8\text{cc} \times \frac{20\text{wt}\%}{100} = 1.6\text{cc}$  となる。定電流制御評価の場合は、評価終了後のDMFCタンク内燃料量は約2cc、濃度は3wt%となっていたことから、使いきれなかったメタノール量は  $2\text{cc} \times \frac{3\text{wt}\%}{100} = 0.06\text{cc}$  となる。出力電力量増加制御評価の場合は、評価終了後のDMFCモジュール内燃料量は約1cc、濃度は1wt%となっていたことから、使いきれなかったメタノール量は  $1\text{cc} \times \frac{1\text{wt}\%}{100} = 0.01\text{cc}$  となる。したがって、本効果によるDMFC出力エネルギー量の増加は  $\frac{1.6\text{cc}-0.01\text{cc}}{1.6\text{cc}-0.06\text{cc}} = 1.03$  倍となる。

以上の2つの効果に、本論文では割愛したが高効率化のために改良試作した昇圧型DC/DCコンバータ効率87%(1.5V~1.1V効率の平均)を加えて計算すると、 $1.46 \times 1.03 \times \frac{87\%}{100} = 1.31$  倍の効果と見積もることができる。前述の実測定から得られた効果である1.30倍とほぼ一致していることが分かる。

さらに、DMFCモジュール内圧力は出力開始時に上昇するが、最大電力量増加制御の方が低く抑えられていることが分かる。DMFCモジュール内圧力の上昇は、DMFCモジュール内の気液分離膜からDMFC発電で発生する二酸化炭素の排出が安定するまでの期間であるが、最大電力量増加制御の場合はDMFC電圧の下限によりDMFC電流が制限されるため、発生する二酸化炭素の増加を防止すること

ができる。DMFC モジュール内圧力の増加を防止することで、液洩れを起こす危険性が低下する。

#### 6.4.5 変温・出力電力量増加制御の実験

最後に、「出力電力量増加制御，DMFC 温度変動，DC/DC コンバータ有り」の条件で行った実験について説明する。

恒温槽を止めて DMFC の温度上昇を可能としている。4 セル直列の DMFC モジュールに出力電力量増加制御システム基板を接続し，基板の出力電力・DMFC モジュール温度・DMFC タンク内圧を測定した結果を以下の図 6.7 に示す。なお，出力は前実験同様，60 秒間の平均で示している。DMFC モジュール温度は最大 29.6 °C，連続駆動時間は 7100s，出力エネルギー量は 1.38Wh となった。定温・出力電力量増加制御の実験に温度上昇を加えたことによる効果は  $\frac{1.38\text{Wh}}{1.28\text{Wh}}$  から 1.08 倍の増加となる。

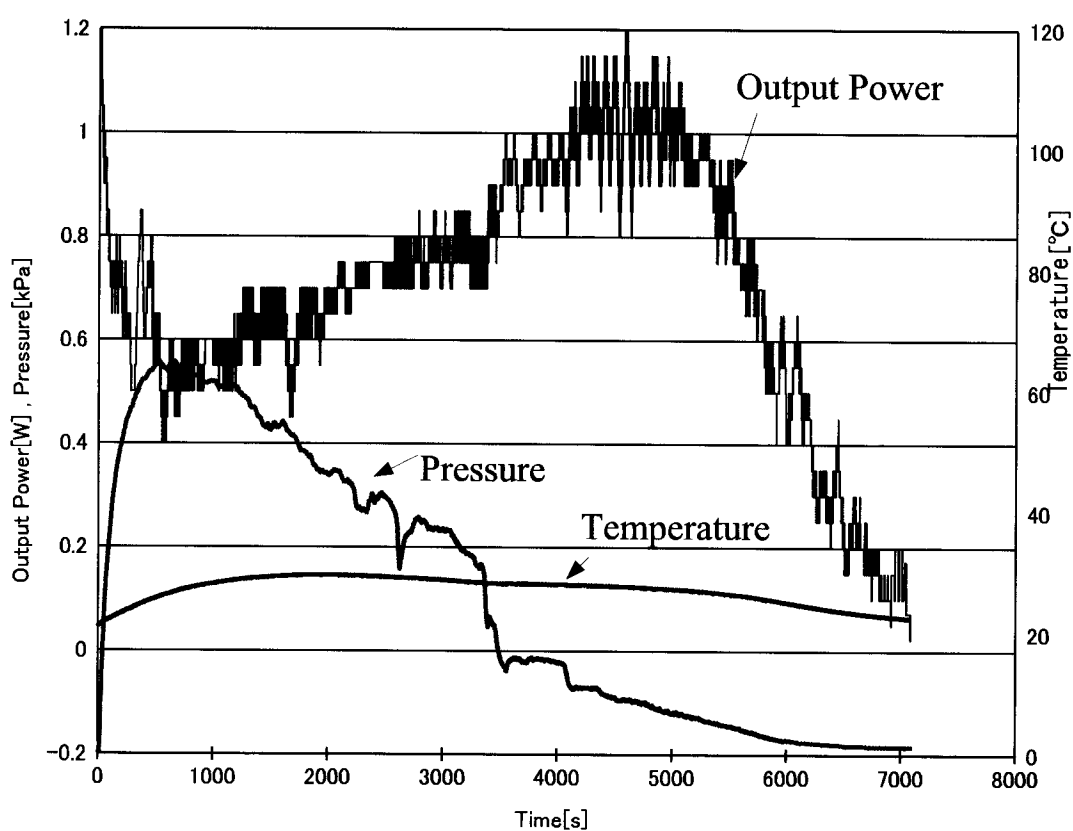


図 6.7: 出力電力量増加制御による出力・温度・圧力推移 (恒温槽停止)

#### 6.4.6 DMFC 変温の場合の効果

本実験結果における効果は、使用する DMFC 電圧を制御で上昇させたことによる DMFC 出力効率の上昇にあると考える。

本評価では DMFC の温度はほぼ 25 °C 以上となり、DMFC 電圧は表 6.1 の温度テーブルにおける 25 °C 以上 30 °C 未満の電圧範囲 1.6V~1.1V(平均 1.4V) となる。温度上昇のない出力電力量増加制御評価の DMFC モジュールの平均出力電圧は前述のように 1.3V である。したがって、本効果による DMFC 出力エネルギー量の増加は  $\frac{1.4V}{1.3V}$  から 1.08 倍と見積もれ、実効果の 1.08 倍と一致していることが分かる。なお、評価終了後の DMFC タンク内燃料量は約 1cc、濃度は 1wt % となっていたことから、燃料消費延長効果には差が見られなかった。

## 6.5 結果の比較および考察

以上の結果の比較およびまとめを図 6.8 と表 6.2 に示す。

図 6.8 から、出力電力量増加制御の方が定電流制御よりも特に駆動時間に大きな差が出ていることが分かる。

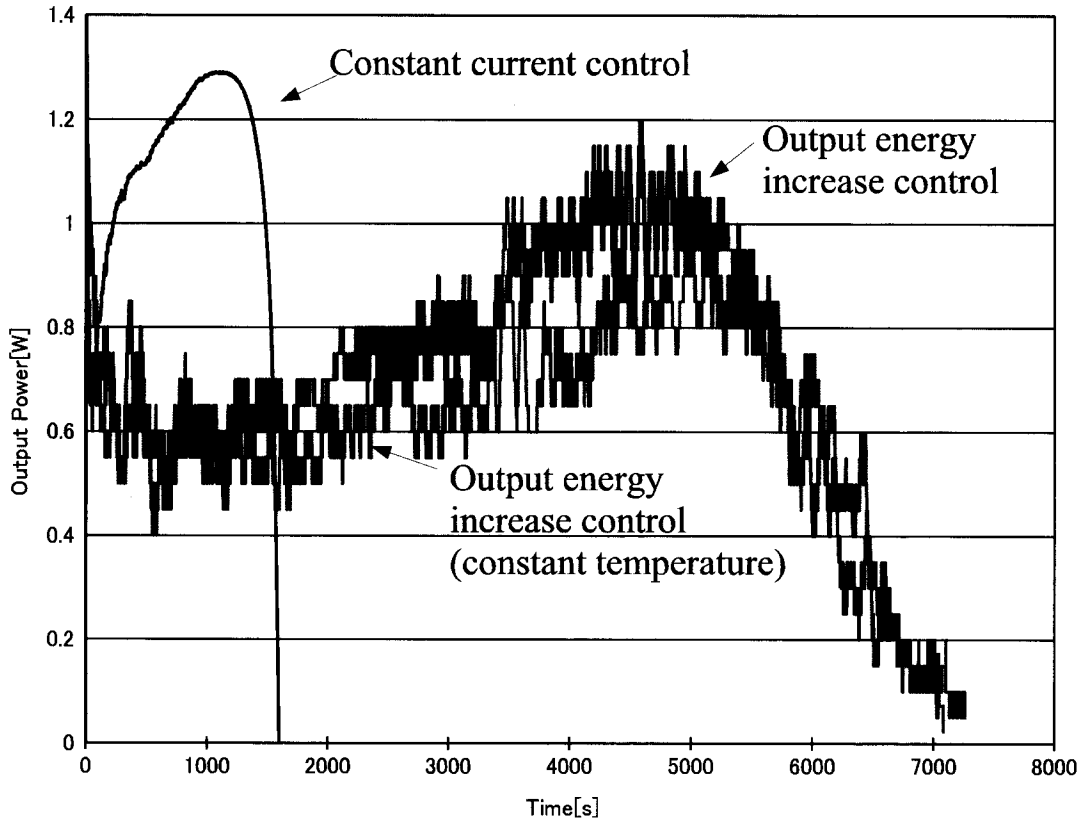


図 6.8: 各制御による DMFC 出力電力比較

表 6.2: 定電流制御に対する出力電力量増大制御効果まとめ

	Output energy increase control (no heat)	Output energy increase control
DMFC voltage effect	146 % ( $\frac{1.3V}{0.89V}$ )	157 % ( $\frac{1.4V}{0.89V}$ )
Methanol effect	103 % ( $\frac{1.6cc-0.01cc}{1.6cc-0.06cc}$ )	103 % ( $\frac{1.6cc-0.01cc}{1.6cc-0.06cc}$ )
DC/DC efficiency	87 %	87 %
Result of calculation	131 % (146 % × 103 % × 87 %)	140 % (157 % × 103 % × 87 %)
Experiment result	130 % ( $\frac{1.28Wh}{0.981Wh}$ )	141 % ( $\frac{1.41Wh}{0.981Wh}$ )

表 6.2において、DMFC 電圧の効果、メタノールの消費延長効果、DC/DC コンバータ効率の積で算出したエネルギー量増加効果を算出結果としている。この算出結果が DMFC 温度上昇の無しと有の条件でそれぞれ 131 %、140 %であるのに対して、実験結果はそれぞれ 130 %、141 %である。算出結果と実験結果との差が 1 %以下と小さく、狙いとした制御の妥当性を確認することができた。

## 6.6 まとめ

充電器型 DMFC システムであるパルスチャージ制御システムに適用可能な出力電力量増加制御を提案し、実験および効果の検証を行った。

始めにパッシブ型 DMFC の発電効率は使用電圧と理論電圧の比で決まることを示したが、使用電圧を上昇した場合の出力低下を考慮する必要がある。そこで、本稿では、DMFC 温度の上昇制御と DMFC 電圧による DMFC 出力効率の制御を特徴とする出力電力量増加制御方式を新たに提案した。

出力電力量増加制御を適用した実験の結果、一般的な定電流制御方式に対し、1.41 倍のエネルギー量増加効果を確認できた。また、算出結果と実験結果との効果の差が 1 % 以下と小さく、狙いとした制御の妥当性を確認することができた。

本報告に述べる出力電力量増加制御システムの新制御は、高密度化が要求される DMFC の出力効率増加という、実用化に不可欠な技術である。

本論文で行った実験は環境温度 20 °C の条件のみであるが、温度上昇による出力電力量増加効果が得られたことから、0 °C 以下の温度範囲以外であれば出力電力量増加制御による効果が得られると考える。



## 参考文献

- [1] 乗松 泰明, ” 電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池の開発, ” 平成 19 年 電気学会全国大会, 分冊 4, no.4-021, pp.34, Mar.2007.
- [2] 乗松 泰明, ” 電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池制御システムの開発, ” 平成 19 年 電気学会産業応用部門大会, R1-8, 1-53, pp.355-356, Aug.2007.
- [3] 乗松 泰明, ” 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール型燃料電池制御システムの開発, ” 電子情報通信学会誌 B, Vol. J91-B, no.2, pp.217-222, Feb.2008.
- [4] 乗松 泰明, ” 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向けパッシブ温度制御システムの開発, ” 電気学会論文誌 D, Vol.129, No.1, pp.88-94, Jan.2009.
- [5] 佐藤 健児, ” 電気二重層キャパシタシステムの燃料電池自動車への応用, ” 信学技報, Vol.104, No.576, pp.65-70, Jan.2005.
- [6] Yasuaki Norimatsu, ”Development of Direct Methanol Fuel Cell Charger Using Electric Double Layer Capacitor, ” Intelec2009 Energy Management & Storage 2, Es2-1, pp.1-5, Oct.2009.
- [7] 木下 繁則, ” 電気二重層キャパシタの性能特性に関する最適評価法の研究 (2), ” 平成 19 年電気学会産業応用部門大会, R1-8, 1-53, pp.357-360, Aug.2007.
- [8] Yasuaki Norimatsu, ”Development of a Maximum-power-point-limiting (MPPL) Control System for a Direct Methanol Fuel Cell, ” IEEJ Transactions on Electrical and Electronic Engineering, Vol.6, no.5, pp.1-6, Sep.2011.
- [9] 乗松 泰明, ” 直接メタノール形燃料電池向け最大電力点制限 (MPPL) 制御システムの開発および実証実験, ” 電子情報通信学会誌 B, Vol. J94-B, no.8, pp.1-8, Aug.2011.

- [10] Chary, Ram, Pat Correia, Ravi Nagaraj, and James Song : 「Intel Low-Power Technologies Can Extend Battery Life and Improve Device Usability」 Technology@Intel magazine,September 2004,pg 1
- [11] Menahem Anderman, "Could ultracapacitors become the preferred energy-storage device for future vehicles?", "AABC05, Mar.2006

## 第7章 結言および本研究の社会的 貢献

パッシブ型 DMFC と EDLC をハイブリッドとした充電器向け制御システムであるパルスチャージ制御システムと付随する制御方式を提案した。

第 1 章では、DMFC とそのアプリケーションとして期待されている携帯機器の背景及び開発経緯について述べた。開発を開始した 2002 年当初は、特にモバイル用途の新しい高密度電源として期待されていたため、ノート PC 向けのポストリチウムイオン電池を目指す方向が多くみられた。

その後、携帯機器を取り巻く状況も変化しており、電池の駆動時間への不満が年々大きくなっている携帯電話向けに開発が集中している。したがって、当初のノート PC 向けで多く見られたアクティブ型の制御システムではなく、小型で安価なパッシブ型の制御システムが求められており、本稿で述べたパッシブ型の制御システムを開発した意義は大きい。

また、ポストリチウムイオン電池として単独で電源を構成するのではなく、他の蓄電デバイスとのハイブリッド制御システムとした開発が現在主流である。多くのシステムは LIB をハイブリッド構成としていたが、DMFC と逆の特性となるキャパシタも期待されていた。また、キャパシタ制御に関しては、電池の代替や平滑コンデンサの代替としたシステムが多く、本稿で述べたパルスチャージ制御はキャパシタの特性を最大限活用した新制御方式といえよう。

第 2 章では、DMFC システムの課題や必要技術について紹介した。DMFC は、従来携帯機器で使用してきた 2 次電池とは、開放型である点と液体燃料という点で大きく異なり、使用方法や規格をめぐって試行錯誤がなされた経緯がある。例えば航空機の持込を検討する場合でも、メタノール濃度や量、DMFC 駆動可否等、新たに議論された点が多くあった。システムにおいても、水素型と構造が似ており補機で調整制御可能なアクティブ型と異なり、パッシブ型では構造からシステム制御まで多くの新規開発がなされている。

第 3 章では、DMFC と EDLC のハイブリッド制御システムであるパルスチャージ制御システムを提案した。DMFC の出力設計は携帯電話の平均電力相当にすることで発電部を小型化し、ピーク電力に対する不足分は、出力密度に優れた EDLC により補完することで、常に携帯電話要求電力以上を保証し、かつ蓄電デバイスも小型化可能となる。結果、パルスチャージ制御の適用により、充電器体積は適用しない場合の約 34 % を実現した。DMFC の実用化の始めとして、携帯電話本体の技術課題に左右されない充電器型が期待されているが、ピーク電力は本体への内蔵型よりも高出力が要求される。LIB ハイブリッド型はピーク出力を保証した場合のサイズの増加と LIB の充電が必要となる状況があるのが問題であるが、EDLC をハイブリッド可能となったことでこれらの問題を解決した小型システムが実現できた。

第 4 章では、パルスチャージ制御システムによる小型化の利点とトレードオフとなる放熱の問題を解決する温度制御方式を提案した。DMFC の温度特性と最大電力との関係に着目し、DMFC 電圧のみで出力電力と発熱が制御可能であることを新たに見出し、実験により 45 °C 以下への温度制限ができていることも確認でき

た。アクティブ型では、空気極に供給する空気流量や燃料極に供給する燃料流量を制御することで DMFC 温度の制限は可能である。パッシブ型では、これらの制御は不可能であり、新たな解決策が必要となっていた。本温度制御方式を用いることで、携帯機器用の燃料電池に広く採用されている自然呼気型への適用が可能となる。

第5章では、DMFC 電圧に対する EDLC 保護回路である OCV クランプ方式と動特性の評価方式を提案した。DMFC の OCV 付近の出力は不安定であり、通常使用することはない。DMFC 性能を示す I-V 特性 (静特性) では OCV 付近の電力は最大電力の  $\frac{1}{100}$  程度と非常に小さい。だが、実際の電流低減動作を模擬した動特性評価は静特性と性能が大きく異なることが新たに分かった。本特性はアクティブ型では見られなかったパッシブ型で新たに分かった特性である。

最後に第6章では、DMFC が元々期待されていた高エネルギー密度という原点に対して、制御によりエネルギー密度を変化させる出力電力量増加制御を提案した。本制御方式は、DMFC 出力効率が低いと予想した低電圧で DMFC 出力制御を行うことで DMFC 温度を上昇させて、DMFC 出力効率が高いと予想した高電圧で DMFC 出力制御を行うことで高効率出力を実現することを狙いとした制御方式である。一般的な電池評価方式である定電流制御との比較実験の結果、電圧と温度の両方の制御の効果を確認でき、定電流制御に対して電圧制御のみで 1.30 倍、電圧と温度の両方の制御で 1.41 倍の出力電力増加が確認できた。また、理論値からの算出結果と実験結果との効果の差が 1 % 以下と小さく、狙いとした制御の妥当性も確認することができた。本制御方式は、パッシブ型、アクティブ型両方に適用可能な制御であり、実用性が高い。

また、以上に述べたパルスチャージ制御は、Bang-Bang 制御、もしくはヒステリシス制御と呼ばれる非線型制御方式に属する。非線型制御は近年注目されつつある電源制御方式であり、特に高速応答性が利点であることから出力変化の大きな DMFC に適用して安定出力を実現した意義は大きいと考える。また、DMFC と同様に出力の安定性が低い自然エネルギー関係にも本技術を適用することが可能であり、本研究の社会的貢献度は高いと考える。

対して、PWM を始めとする線形制御についても DMFC 向けの新たな線形制御を検討している。線形制御の場合は、連続出力が可能となることから、携帯機器内蔵型の DMFC 電源への適用が最適であり、DMFC の最大電力点までの出力範囲で出力制御を行う Maximum-Power-Point-Limiting control (MPPL 制御) を提案している。

今後は、非線型制御であるパルスチャージ制御と線形制御である MPPL 制御をコアとした DMFC 制御システムを開発していきたい。

## 第8章 本研究に関する業績

### 審査付発表論文（レフェリー制のある学術雑誌）

- ・乗松泰明, 菊地睦, 叶田玲彦：電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール型燃料電池制御システムの開発  
電子情報通信学会論文誌 VOL.J91-B NO.2 217頁～222頁（2008年2月）
- ・乗松泰明, 菊地睦, 叶田玲彦：電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向けパッシブ温度制御システムの開発  
電気学会論文誌D Vol.129 No.1 88頁～94頁（2009年1月）
- ・乗松泰明, 叶田玲彦：電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向け出力電力量増加制御方式の開発  
電気学会論文誌D Vol.129 No.5 534頁～540頁（2009年5月）
- ・Y.Norimatsu: Development of a Maximum-power-point-limiting (MPPL) Control System for a Direct Methanol Fuel Cell,  
IEEJ Transactions on Electrical and Electronic Engineering  
Vol.6 No5（2011年9月予定）
- ・乗松泰明：直接メタノール形燃料電池向け最大電力点制限 (MPPL) 制御システムの開発および実証実験  
電子情報通信学会 B Vol.J94-B No.08（2011年8月予定）

### 審査付発表論文（レフェリー制のある国際会議発表論文）

- ・Yasuaki Norimatsu, Akihiko Kanouda : Development of Direct Methanol Fuel Cell Charger Using Electric Double Layer Capacitor  
Intelec2009 Energy Management & Storage 2 ES2-1（2009年10月）

### 審査なし発表論文（レフェリー制のない学術雑誌, プロシーディング, 総説, 解説, 口頭発表等）

- ・乗松泰明, 菊地睦, 叶田玲彦：電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池制御システムの開発  
平成19年電気学会全国大会
- ・乗松泰明, 菊地睦, 叶田玲彦：電気二重層キャパシタを用いたモバイル用直接メタノール型燃料電池制御システムの開発

- 平成 19 年電気学会産業応用部門大会
- ・乗松泰明, 菊地睦, 叶田玲彦: 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池用 OCV クランプ方式の開発  
平成 20 年電気学会全国大会
  - ・乗松泰明, 叶田玲彦: マイクロ燃料電池の現状および今後の展望  
平成 20 年電子情報通信学会全国大会セミナー部門
  - ・乗松泰明, 叶田玲彦: 電気二重層キャパシタを用いた直接メタノール形燃料電池向け出力電力量増加制御方式の開発  
平成 20 年電気学会産業応用部門大会
  - ・乗松泰明, 菊地睦, 叶田玲彦: 直接メタノール形燃料電池用最大電力点制限 (MPPL) 制御  
平成 21 年電気学会全国大会

## 作品等

- ・2004 年度 KDDI 向け燃料電池充電器
- ・2005 年度 KDDI 向け携帯電話内蔵型燃料電池
- ・平成 19 年電気学会産業応用部門大会優秀論文発表賞受賞。

## 第9章 謝辞

本研究は、著者が株式会社日立製作所日立研究所で推進している、直接メタノール形燃料電池の研究開発に際し、信州大学工学部で行った指導研究の一部をまとめたものである。

本研究を推進するにあたり、研究の初期段階から、炭素材料に限らず広く有意義なご助言を頂き、本研究に関して御指導・ご討論を頂いた信州大学大学院総合工学系研究科の遠藤守信教授に厚く御礼申し上げます。

本論文をまとめるにあたり、手続全般に至るまで広くご助言頂き、御指導・ご討論を頂いた信州大学大学院総合工学系研究科の上村喜一教授に厚く御礼申し上げます。

本論文をまとめるにあたり、論文の細部まで御指導・ご討論を戴いた信州大学大学院総合工学系研究科の脇若裕之教授に厚く御礼申し上げます。

本論文をまとめるにあたり、御指導・ご討論を戴いた信州大学大学院総合工学系研究科の橋本佳男教授に厚く御礼申し上げます。

本論文をまとめるにあたり、御指導・ご討論を戴いた群馬大学大学院工学研究科の白石壮志准教授に厚く御礼申し上げます。

最後に本研究を支えていただいた株式会社日立製作所のプロジェクト全てのメンバーに厚く御礼申し上げます。