

蓄電素子を複合化したポータブル電源の開発

Portable power supply by the composite of the storage devices

● 佐藤 宣夫
機械電子創成工学科 教授

● 牛崎 拓
電気電子情報工学専攻 大学院生

● 2016年9月16日受付

● Nobuo SATOH
Department of Innovative Mechanical and Electronic Engineering, Professor

● Taku Ushizaki
Electrical, Electronics and Computer Engineering, Graduate student

● Received : 16 September 2016

We have developed a portable power supply made up of multiple storage devices. A high-energy density lithium-ion battery (LIB) that includes both an electric double-layered capacitor (EDLC) and an aluminum electrolytic capacitor (AEC) that also has a high-power density is evaluated to determine its suitability as an energy storage device. We measured the frequency characteristics of an electric energy-storage device and discuss how they meet the performance requirements of our applications. Research has shown that the combined storage system delivers high performance in our applications since the unique characteristics of the LIB, EDLC, and AEC can be maintained while the disadvantageous features are compensated for. In summation, an equivalent circuit with capacitance-resistance and/or nonlinear elements was designed and measurements revealed a change in the lapse of time of the discharge voltage of the rechargeable battery.

キーワード：リチウムイオン電池，電気二重層コンデンサ，等価回路

1. 緒言

電気エネルギーは最も扱いやすいエネルギーとして現代社会に受け入れられている[1]。しかしながら，他のエネルギー形態と比較した際に「蓄えにくい」という特性がある。そのため電力系統では，同時同量制御（時々刻々と変動する需要電力に合わせた電力調整）が行われているが，需要と供給のバランスが崩れた際，周波数偏移や電圧変動が起こる。

需要家（個人宅）でのエネルギーの使い方としては突発的な利用が大半であろう。また太陽光や風力などの自然エネルギーの有効利用が求められるが，絶えず変動するエネルギー源である。そのため自然エネルギーに基づく電力供給，その供給量の増加は電力系統の不安定化を招くことが知られている[2]。

電力系統に充放電が可能な「蓄電」の機能を付加した電力貯蔵技術の進展により「発電電力＝消費電力」の構図を変革できる[3]。電力貯蔵技術は夜間電力貯蔵による負荷平準化に限らず，太陽光発電や風力発電といった自然エネルギーとの組み合わせ，スマートハウス，スマートグリッドなどへの活用を含めて，電力品質向上に繋がると期待される。このような電力貯蔵技術において，需要と供給の差を埋め，高品質な電力系統を維持・管理するためには充放電の際に損失が少なく，信頼性の高い蓄電装置や蓄電デバイスが求められる。

電力変動の抑制に蓄電素子を用いる場合，その変動が1秒，1分単位の場合から，1時間や1日という周期の長い負荷平準化を対象とする場合もある。図1は，変動の時間幅および用途別の実用例として，(a) 瞬停補償，(b) 回生電力蓄電，(c) 電力平準化，(d) 負荷変動補償を示す。これらの要求性能に合わせた蓄電システムを設計し，運用される必要がある。

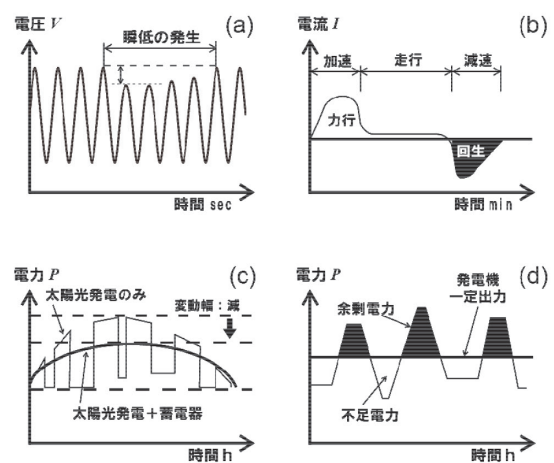


図1. 蓄電素子の適用例 (a) 瞬停補償，(b) 回生電力蓄電，(c) 電力平準化，(d) 負荷変動補償。【文献[3]を参考に作図】

加えて、蓄電システムの設計においては、エネルギー容量 (kWh) と設備容量 (kW)、これら2つの電氣的な容量を考える必要がある。エネルギー密度が優れる蓄電池、パワー密度に優れるキャパシタ、それらの併用効果を利用する方法が提案されており、2000年に太陽光発電システムへの適用例がある[4]。このシステムでは鉛蓄電池の負荷依存率を20%程度低減させることができ、結果として鉛蓄電池の劣化が抑制されたことが報告されている。

本研究の目的は、変動する入力エネルギー（例：日照条件、風力・風向など）を想定し、リチウムイオン二次電池 (LIB; lithium ion battery)、電気二重層キャパシタ (EDLC; electric double layer capacitor)、そしてアルミ電解コンデンサ (AEC; Aluminum Electrolytic Capacitor) の3種類の蓄電素子を複合化した電源システムの開発である。具体的には、それぞれ蓄電素子の周波数応答特性を精査し、それらの蓄電素子を接続した電源システムを構築、各部の電圧/電流計測により性能評価を行う。さらに、電源システムの等価回路モデルを構築するため、回路シミュレータによる数値解析により、それぞれの放電時の特性比較から、ポータブルな電源システムの設計指針を確立していく。

2. 特徴

一般的な蓄電システムでは、充放電を可能とする蓄電素子とその制御回路から構成されることに留意する。また蓄電素子は電荷を蓄える機能を有する素子（デバイス）の総称であり、それらは二次電池（あるいは充電電池）とコンデンサ（あるいはキャパシタ）に分類できる。図2に蓄電デバイスの構成要素別による分類を示す[5]。

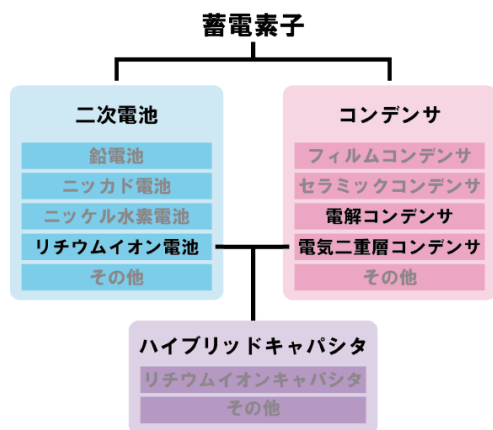


図2. 蓄電素子の種別。

二次電池は、その材料開発の歴史から、鉛系、アルカリ系、リチウム系、などに分類される。コンデンサについては、誘電体としてフィルム（ポリマー材料が主流）あるいはセラミックを用いたもの、電極に酸化皮膜を形成させた電解コンデンサ、さらに電解液（液体）と電極（固体）界面に形成される電気二重層を利用したコンデンサ等がある。加えて電解液にリチウム塩を使用し、負極がリチウムを吸

蔵するカーボン、正極は電気二重層を形成することでエネルギー密度を向上させたリチウムイオンキャパシタ (LIC; lithium ion capacitor) も実用化されている。

2.1 リチウムイオン電池

リチウムイオン電池 (LIB) は、鉛蓄電池やニッケル水素充電電池 (Ni-MH; Nickel - Metal hydride) などの二次電池の中において、最も高いエネルギー密度を有しており、利用用途が拡大している。しかしながら、二次電池の原理としては、化学反応によって電荷の充放電が行われる[6],[7]。そのため、急速な充放電には適していない。つまり、単位時間当たりの出力エネルギー量が大きくないために、変動抑制の観点からは、理想的な蓄電素子とは言い難い。

このような問題に対する試みの一つとして、LIBに電気二重層キャパシタ (EDLC) が併用されるシステムも考案されている[4],[8],[9]。EDLCでは、電荷は物理吸着されることで蓄積される。つまり化学反応を伴わないため、急速な充放電に適している。

2.2 電気二重層キャパシタ

電気二重層キャパシタ (EDLC) では、電解液が電気分解しないように、その電圧性能として3V程度を定格電圧としているものが多い。実際の用途では直列接続により100~800V程度で用いられる。しかしながら、EDLC端子間において静電容量に差異があると、充電時に各EDLCの電圧上昇速度が異なり、電圧差を生じる。この直列接続されたEDLCの分担電圧のうち、1つでも最大定格を超えた場合はシステムの破壊が誘引されるため、静電容量の差が少ないEDLCを組み合わせる必要がある。各EDLCの分担電圧が決まる要因は、静電容量、内部抵抗、そして自己放電の原因ともなる漏れ電流である。分担電圧の均等化については、漏れ抵抗のばらつきを低減させる必要があり、EDLCの構成材料の均質化、さらに有機系電解液の分解に影響する水分の除去のために、外部から水分を侵入させないことが重要となっている。

EDLCでは残存電荷量を均一にするバランス回路（バランス）のほか、定電圧源ではなく、定電流源による充電が望ましく、スイッチングコンバータ回路を用いた定電流回路による高効率充電が提案、実用化されている。またEDLCを長時間使用すると、不純物起因の分解ガスが発生し容器が膨張するため、セパレータや電極に剥離が生じて内部抵抗が上昇、最終的にはオープン状態となり充放電できなくなる。

2.3 アルミ電解コンデンサ

電気・電子工学分野において、受動部品に分類されるコンデンサは、用いる回路内において、エネルギー平滑、電位レベルの安定化、ノイズ除去、そしてエネルギー蓄電の機能を担っている。このような多種多様な機能性から、情報通信機器だけではなく、あらゆる電気・電子機器に欠く

ことのできない素子である。また実際に使用するコンデンサについては、静電容量、周波数応答特性によって考慮する必要がある。図3および図4に、それぞれコンデンサの公称静電容量と使用可能な周波数を示す。

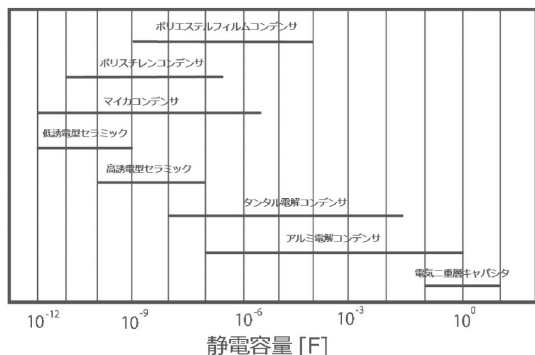


図3. 各種コンデンサの静電容量における比較。

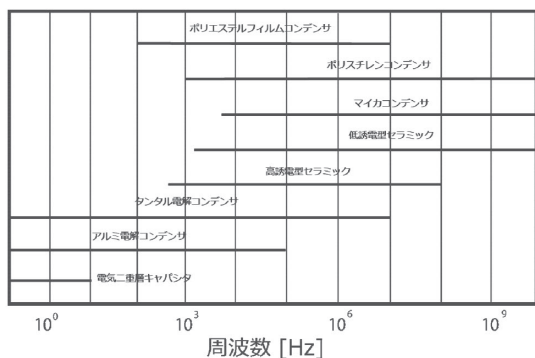


図4. 各種コンデンサの適用周波数における比較。

本研究で用いる3つの蓄電素子を、それぞれパワー密度とエネルギー密度の相関を表すとされる Ragone プロットを図5に示す[10]。

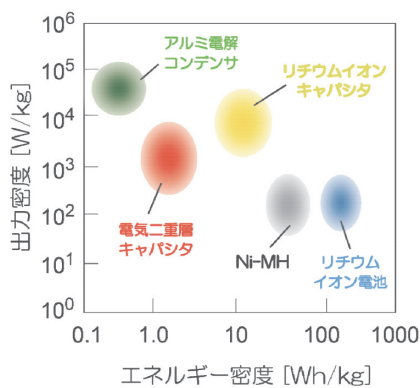


図5. Ragone プロット

3. 実験方法

3.1 使用した蓄電素子

エネルギー密度が優れているリチウムイオン電池 (LIB), パワー密度に優れる電気二重層キャパシタ (EDLC), そして EDLC よりも良好な応答特性を示すと期待されるアルミ電解コンデンサ (AEC) に着目し、それらをうまく併用することで、優れた応答速度を有する電源システムを提案する。図6に、本研究で使用した3種類の蓄電素子の外観を示し、表1に蓄電素子の性能をまとめる。

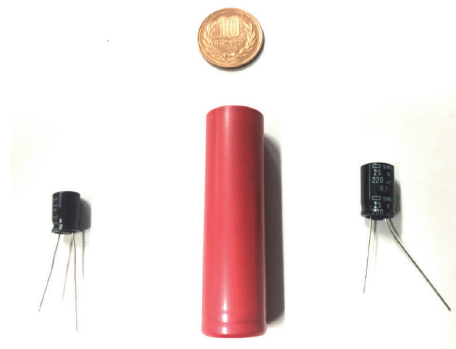


図6. 本研究で使用した蓄電素子の外観。
(左: EDLC, 中央: LIB, 右: AEC)

表1. 蓄電素子とその電圧および容量

蓄電素子名	端子電圧 (耐電圧)	静電容量 (電流容量)
LIB(18650型)	4V	2350mAh
EDLC	2.7V	1F
AEC	25V	220 μ F

3.2 蓄電素子単体の周波数応答特性

本研究で用いる LIB, EDLC 及び AEC の素子単体の周波数応答特性を評価する。本測定には周波数応答アナライザ (PSM1735, 岩通計測製) を使用した。測定電圧 V_{in} は正弦波交流 4[V], 測定範囲は 1[Hz] ~ 1[MHz] として、それぞれの素子の応答特性をまとめて図7に示す。

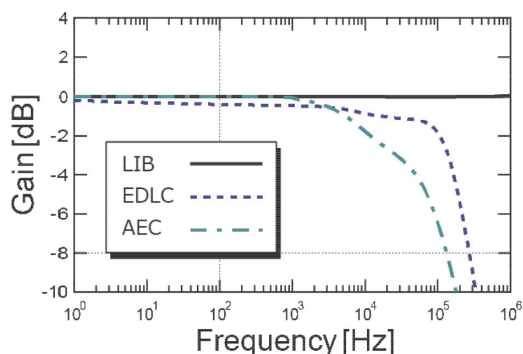


図7. 本報告で使用した蓄電素子の周波数特性

まず図7において、LIBは測定周波数に対してまったく応答を示しておらず、本研究では、その周波数特性については考慮しないこととした。

続いて、EDLCおよびAECの応答速度として、その充放電現象を律速するのは、電解液中の各イオン・物質の移動速度であり、ワールブルク（Warburg）インピーダンスとも呼ばれる[6]。ここでEDLCは10 Hzを超える程度からGainの低下により容量低下（インピーダンスの増大）が確認される[11]。一方、AECも1 kHz帯までは良好な応答性能を有するが、その後、急激なインピーダンスの増加が確認される。

EDLCおよびAECをLIBと組み合わせた併用効果における、自然現象を想定した入力エネルギー変動の抑制効果を期待した場合、それに相当する時間（ミリ秒オーダー）を超えるような応答速度は想定されず、さらに充電も放電もできる部分充放電状態（Partial State of Charge : PSOC）[12]を仮定しても、これらの蓄電素子が充分に利用できるかと判断した。

3.3 ポータブル電源システム

本研究で作製したポータブル電源システムの回路模式図を図8に、その外観を図9にそれぞれ示す。LIB、EDLCおよびAECの3種類の蓄電素子を並列接続しているが、EDLC及びAECは、トグルスイッチによって、それぞれを使用する／使用しないという切り替えができる仕様となっている。そのため「LIB単体」、「LIBとEDLCの併用」、「LIBとEDLC + AECの併用」の三種類の実験評価を可能としている。

また左上にあるスイッチは、パワーMOSFETを使用することにより、5秒間隔でON/OFFの切り替えを行うことで充放電特性を計測している。

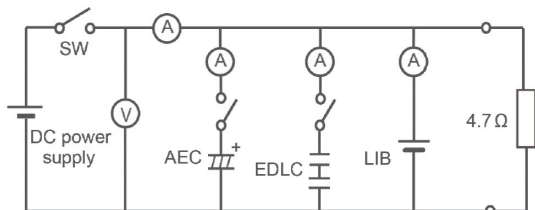


図8. ポータブル蓄電システムの回路模式図.

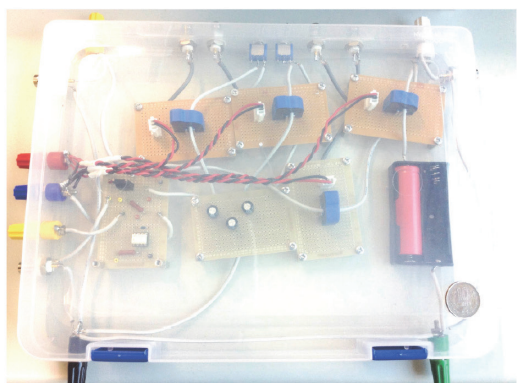


図9. ポータブル電源システムの外観図.

図10に、本研究で作製したポータブル電源の充放電特性を示す。ここでLIBは事前に「空」状態にして実験している。本研究では、「LIB単体」、「LIBとEDLCの併用」、「LIBとEDLC + AECの併用」と3種類の実験を行っており、それぞれの結果について述べる。

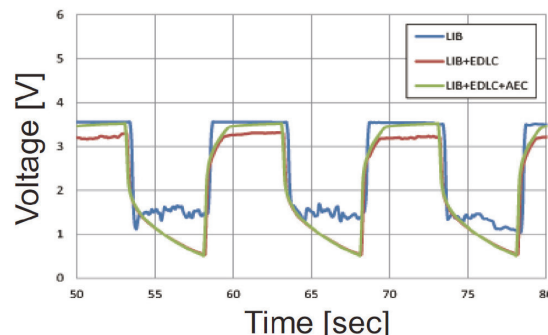


図10. 各種蓄電素子の利用に応じた時間応答波形.

(a) LIB単体の場合.

LIB単体の動作では、まず充電時には、直ちに充電電圧を3.8 [V]に到達している。今回、電流センサによる電流値の同時観測には至っていないため、本報告では言及できないが、大きな突入電流が流れていることも予測され、過電流によるLIBの劣化が懸念される。また放電時の電圧の挙動が不安定な点を確認される。しかしながら、当該現象については再現性が乏しく、未だに解明ができていない。

(b) LIBとEDLCの併用の場合.

LIBとEDLCの併用では、充電時では充電設定電圧である3.8 [V]には到達していないことが確認できる。スイッチング毎の到達電圧に差異があることから、MOSFETによるスイッチング制御に課題があると考えられる。また放電時には、EDLCの静電容量と抵抗値から、RC時定数 ($0.5 [F] \times 4.7 [\Omega] = 2.35 [s]$)での放電現象が観測されている。

(c) LIBとEDLC + AECの三種併用の場合.

LIBとEDLCおよびAECの併用では、充電時において充電設定電圧3.8 [V]に到達していることが確認された。これはEDLC及びAECが有する良好な周波数応答特性に基づいて、電圧変動が抑制されたことに起因する可能性がある。さらに、システム内にEDLCとAECが並列接続されていることにより、僅かながらも静電容量の増加や互いの電位レベルが保たれるように電荷の授受が行われるバランス作用が働くことで、蓄電システムの応答特性の向上に寄与していることが示唆される。

4. 考察

4.1 実測波形とシミュレーション波形との比較

ポータブル電源システムの実測波形（図10）をシミュレーション波形と比較検証を行うことで、その充放電現象

を理解した上で、設計指針を確立するための等価回路モデルを構築した。今回、提案する等価回路モデルを図 11 に示す。左部は AEC 素子、中央部は EDLC、右部は LIB を模擬しており、それらが並列接続されている RLC 素子による等価回路モデルである。

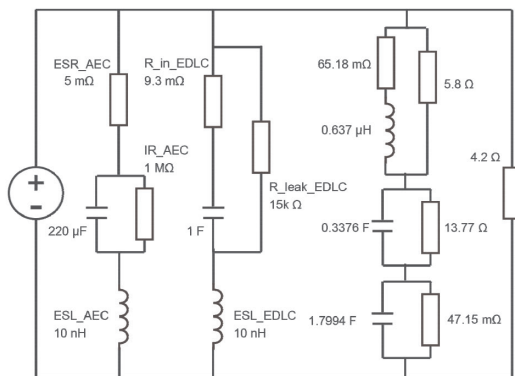


図 11. 各種蓄電素子を並列接続した等価回路モデル。

等価回路モデルを回路シミュレータ (LT spice, Linear Technology 社製) により数値計算し、得られた電圧波形を図 12 に示す。ここで「LIB 単体」、「LIB と EDLC の併用」、「LIB と EDLC + AEC の併用」を比較検証するために、それぞれの結果を合わせて示している。

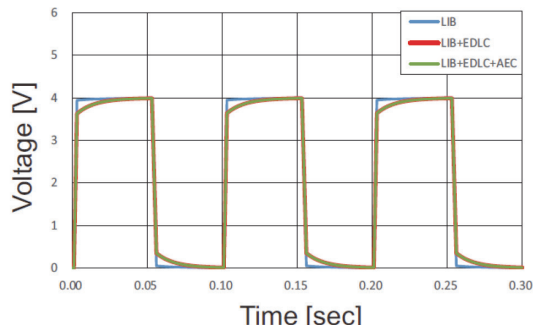


図 12. 各種蓄電素子の等価回路での模擬応答波形。

放電時に観測された指数関数的に電位が減少するカーブの形状、またその電圧変動の抑制について模擬することができた。しかしながら、LIB と EDLC の併用時のみ観測された充電電圧に到達していない現象は模擬できていない。さらに充放電の切換えにおいては、1 / 100 の時間スケール表記であり、全く模擬ができていない。EDLC と AEC に関しては、データシートなどを参考に寄生インピーダンス成分をパラメータ値として、LIB は参考文献 [13] に基いているが、特に等価回路モデルの LIB を模擬している部分について再考する必要がある。

4.2 LIB の等価回路モデル

実測データ取得のために、円筒スパイラル型 (18650 セル、公称値：4200 mAh) の LIB を別途用意し、複数回の充放電試験後、電子負荷装置 (LW151-151D; TEXIO 社製) により定抵抗 (4 [Ω]) 放電を実施した。その結果を図 14 (a) に示す。

LIB の急激な電圧低下を模擬するために、今回、ツェナーダイオード (非線形性) ならびにトランジスタ (電流路切換え) を有する等価回路モデルを図 13 の通りに考案した。

実測データと等価回路で得られる放電曲線を比較し、考案した等価回路モデルの妥当性を検証した。

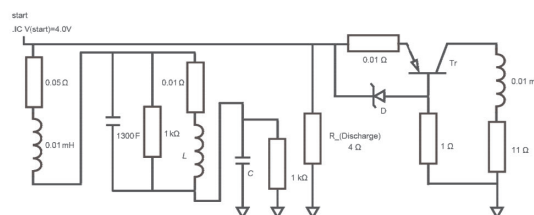


図 13. リチウムイオン電池の特性を模擬する等価回路モデル (非線形素子利用)。

図 14 にリチウムイオン二次電池の放電時間に対する端子電圧の変化の様子を示す。それぞれ (a) 実測値、(b) キャパシタンスを変化させた場合のシミュレーション結果、(c) インダクタンスを変化させた場合のシミュレーション結果を示す。

図 14 (a) の実測値について、放電開始後の 550 [sec] 付近で急激な電圧降下が確認されている (以下、変位点)。これはイオンの拡散に基づくとされるワールブルグインピーダンス成分による影響であると考えられる。

続いて図 14 (b) は、提案している LIB の等価回路モデルにおいて、電池内部の静電容量 C を、それぞれ 2200, 2300, 2400 [F] と変化させた場合の放電カーブの様子である。ここで容量の大きさに応じた放電カーブの相違ならびに変位点の移動が確認できる。しかしながら、放電電圧が 1 [V] 程度に至った場合に、放電電圧値の鈍化現象が模擬できていない。

続いて、電池内部に寄生インダクタンス成分が存在すると仮定した。具体的には、それぞれ 3.5, 4.0, 4.5 [H] と比較的大きな寄生成分を有する場合の数値解析では、放電電圧がすぐには零にはならず、言い換えれば、RC 放電カーブとの相違が模擬できた。

今後、この LIB の等価回路モデルを、ポータブル電源システムのモデルとして利用した上で、充放電特性を精査していく予定である。ただし、二次電池における数秒間隔での充放電現象と満充電状態から空状態への状態遷移を模擬は容易ではないことを付記する。

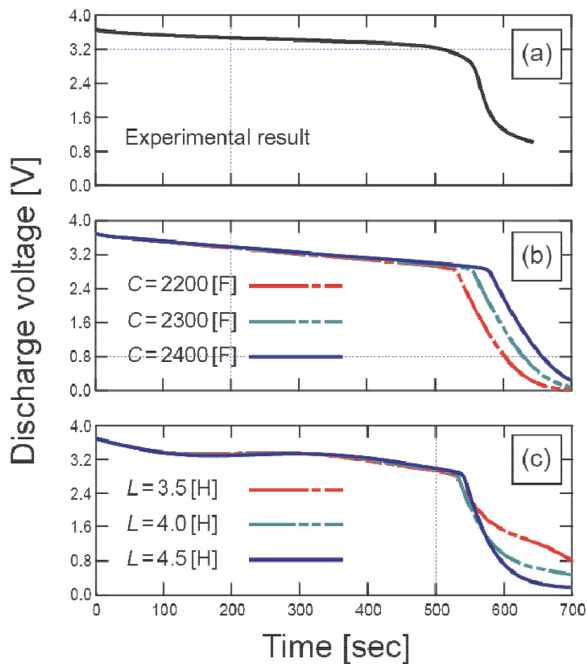


図 14. リチウムイオン二次電池の放電曲線 (a) 実測結果 (b) 等価回路での容量変化 (c) 等価回路でのインダクタンス変化。

5. 結言

ポータブル電源システムとして、蓄電素子を単体ではなく、LIBとEDLCおよびAECの並列接続により、応答特性の違いを組み合わせた蓄電システムを考案・作製し評価した。またシステム全体の等価回路モデルから、LIBの等価回路モデルの再構築を行い、ワールブルグインピーダンス成分を半導体素子（ダイオード、トランジスタ）の組み合わせによって表現する手法を提案した。今後、充放電現象と満充電状態から空状態への状態遷移を正しく模擬するモデルを提案、評価していく。

最後に、LIBとEDLC & AECにおける、エネルギー密度、パワー密度、端子電圧、環境動作温度、充放電サイクル特性、安全性能の指標を図15に示す。これら異なる特徴をうまく複合化し、さらには回路による安全性能の向上、電圧調整、環境温度制御を行うことで、汎用性の高いポータブル電源システムの実現へと繋げていく。

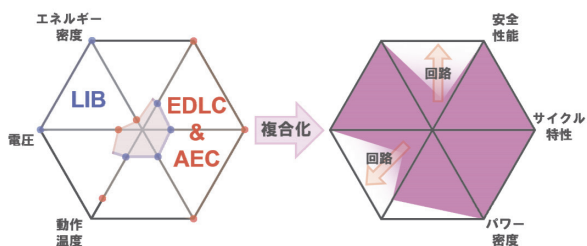


図 15. 蓄電素子の特徴と複合利用。

謝辞

本研の一部は、私立大学戦略的研究基盤形成支援事業および学術振興機構先端計測分析技術・機器開発プログラムの研究支援を受けたことを記し、ここに謝辞を表します。

参考文献

- [1] 柏木孝夫, 他: 「スマートエネルギーネットワーク最前線」, エヌ・ティー・エス (2013).
- [2] 電気化学会エネルギー会議電力貯蔵技術研究会編: 「大規模電力貯蔵用蓄電池」, 日刊工業新聞社 (2011).
- [3] 宮田清蔵, 他: 「高性能蓄電池」, エヌ・ティー・エス (2009).
- [4] 川口博嗣, 他: 「電気二重層キャパシタを組み込んだ独立型太陽光発電システム」, 電気学会電力・エネルギー部門大会論文集 Vol. 11, pp. 665-666 (2000).
- [5] 岡村勉夫: 「電気二重層キャパシタと蓄電システム」, 日刊工業新聞社 (1999).
- [6] 小久見善八ら: 「リチウム 2 次電池」 オーム社 (2008).
- [7] S. Kawano et al.: " Numerical Analysis of Discharge Characteristics in Lithium Ion Batteries Using Multi-phase Fluids Model," Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 44, No. 6A, pp. 4218-4228 (2005).
- [8] 竹村大吾, 他: 「キャパシタとリチウムイオン電池の併用効果検討」, 電池討論会講演予稿集 Vol 50, p.76 (2009).
- [9] 美馬圭介, 他: 「リチウムイオン電池・電気二重層キャパシタの併用効果に関する検討」, 電子情報通信学会技術研究報告 No. 109, pp.33-38 (2010).
- [10] 山本秀和, 他: 「現代電気電子材料」, オーム社 (2013).
- [11] P. R. Bueno et al., : " Nanostructured Li Ion Insertion Electrodes. I. Discussion on Fast Transport and Short Path for Ion Diffusion" J. Phys. Chem. B, No. 107 pp.8868-8877 (2003).
- [12] 足立修一, 他: 「バッテリーマネジメント工学」, 東京電機大学出版局 (2015).
- [13] K. A. Smith et al., : "Control oriented 1D electrochemical model of lithium ion battery," Energy Conversion and Management, Vol. 48 pp. 2565-2578 (2007).