

ISSN 0916-7501  
CODEN : TTEREB

# TOYOTA Technical Review

[トヨタ・テクニカル・レビュー]

2019/8 235

特集

## 将来の電池技術

～燃料電池と蓄電池

VOL.65

## 【表紙のデザイン】

100年に一度の大変革時代を迎えているなかで、「自動車会社」から「モビリティカンパニー」に変革していかなければいけないとの強い意志を、赤を基調に構成し、「変革」「革新」を指す「革」という文字で表しています。



TOYOTA Technical Review

235

Vol. 65 Aug. 2019

# 目次

## 巻頭言

- ・「自動車会社」から「モビリティカンパニー」へ～変革を支える「電動化」技術～  
副社長 寺師 茂樹 .....4

## ▷特集「将来の電池技術～燃料電池と蓄電池」

- 基調論文：将来の電池技術～燃料電池と蓄電池 .....小東 哲也／阿部 真知子 .....6
- ・厚膜電極構造をもつ全固体電池 .....加藤 祐樹／塩谷 真也／森田 圭祐 ..... 12
- ・放射光・中性子による蓄電池炭素負極の構造相転移解析 ..... 高木 繁治 ..... 19
- ・硫化物全固体電池における LiFePO<sub>4</sub> 正極の自己形成界面  
大崎 真由子／今野 学／古賀 英行／小谷 幸成／中西 真二／射場 英紀 ..... 27
- ・リチウムイオン電池の異物内部短絡試験手法開発  
瀧崎 真一／石原 裕也／宮澤 健作／金子 哲也 ..... 33
- ・新型カムリ HV 用リチウムイオンセルとバッテリーパック開発 ..... 副島 崇礼／伊藤 秀太 ..... 39
- ・トヨタフューエルセルシステム“TFCS”の紹介 ..... 木崎 幹士 ..... 43
- ・高性能・低コスト FC スタックの開発  
水野 誠司／紺野 周重／壺阪 健二／西海 弘章／窪 英樹／戸沼 利之 ..... 49
- ・MIRAI のための高圧水素貯蔵システム開発  
近藤 政彰／山下 顕／後藤 荘吾／大神 敦幸／小林 朋能／大坪 弘和 ..... 56
- ・新型燃料電池バスの FC システム開発 .....小川 朋宏／馬屋原 健司／井漕 好博 ..... 65

## ▷論文／解説

- ・生産性向上を狙ったライン内情報活用 .....渡邊 祐貴／林 佑樹／藤村 皓亮 ..... 70
- ・人工知能を活用したエンジン起動時振動ばらつき要因解析  
下出 健人／石崎 啓祐／駒田 匡史 ..... 76
- ・環境調和型表面処理「固相電析法」の開発 .....佐藤 祐規／飯坂 浩文／村井 盾哉 ..... 83
- ・冷却機構内蔵パワーデバイスの研究  
福岡 佑二／Feng Zhou／Ercan M. Dede／Ki Wook Jung／Shailesh N. Joshi／Yanghe Liu ..... 90

- ▷受賞技術概要 ..... 96

# Contents

## Preface

- From a Car-Making Company into a Mobility Company  
- The Electrification Technologies Supporting Toyota's Transformation -  
Shigeki Terashi, Executive Vice President ..... 4

---

## ▷ Special Feature: The Battery Technologies of the Future - Fuel Cells and Storage Batteries

- Introduction: The Battery Technologies of the Future - Fuel Cells and Storage Batteries  
Tetsuya Kohigashi/Machiko Abe ..... 6
- All-Solid-State Batteries with Thick Electrode Configurations  
Yuki Kato/Shinya Shiotani/Keisuke Morita..... 12
- Analysis of Structural Phase Transition of Storage Battery Carbon Negative Electrodes Using  
Synchrotron Radiation and Neutrons  
Shigeharu Takagi ..... 19
- Self-Forming Interface of LiFePO<sub>4</sub> Cathode in Sulfide All-Solid-State Battery  
Mayuko Osaki/Manabu Imano/Hideyuki Koga/Yukinari Kotani/Shinji Nakanishi/Hideki Iba..... 27
- Development of Test Methodology for Internal Short-Circuits Caused by Foreign Matter  
in Lithium-Ion Batteries  
Shinichi Hamasaki/Yuya Ishihara/Kensaku Miyazawa/Tetsuya Kaneko ..... 33
- Development of Lithium-Ion Cells and Battery Pack for Redesigned Camry HV  
Takanori Soejima/Shuta Ito ..... 39
- Introduction to the Toyota Fuel Cell System (TFCS)  
Mikio Kizaki ..... 43
- Development of High Performance and Low Cost Fuel Cell Stack  
Seiji Mizuno/Norishige Konno/Kenji Tsubosaka/Hiroaki Nishiumi/Hideki Kubo/Toshiyuki Tonuma .... 49
- The High- Pressure Hydrogen Storage System for the Mirai FCV  
Masaaki Kondo/Akira Yamashita/Sogo Goto/Nobuyuki Ogami/  
Tomoyoshi Kobayashi/Hirokazu Otsubo..... 56
- Development of Fuel Cell System for New FC Bus  
Tomohiro Ogawa/Kenji Umayahara/Yoshihiro Ikogi ..... 65

---

## ▷ Technical Papers/Technical Articles

- Utilization of Production Line Information to Improve Productivity  
Yuki Watanabe/Yuki Hayashi/Hiroaki Fujimura..... 70
- Factor Analysis of Engine Start Vibration Variations Using Artificial Intelligence  
Kento Shimode/Keisuke Ishizaki/Masashi Komada ..... 76
- Development of Solid Electrodeposition Method as an Environmentally Friendly Surface Treatment  
Yuki Sato/Hirofumi Iisaka/Junya Murai ..... 83
- Research into Power Devices with Embedded Cooling  
Yuji Fukuoka/Feng Zhou/Ercan M. Dede/Ki Wook Jung/Shailesh N. Joshi/Yanghe Liu ..... 90

---

## ▷ Technical Award News ..... 96

## 「自動車会社」から 「モビリティカンパニー」へ ～変革を支える「電動化」技術～

副社長

豊田 利雄



我々は、これまで自動車作りを通して、地域への貢献、町いちばんの会社になりたいという思いでやってきました。しかし、これからは、地域や自国への貢献「Home town」「Home Country」だけではなく、いわば「Home Planet」ともいうべき概念が重要です。地球全体を、国境のない「Home」として捉えたとき、トヨタがどう貢献していけるのか、自動車業界がどう貢献していけるのか、この大きなテーマを、課題として考えていきます。

自動車業界は、100年に一度の大変革期に突入したと言われています。トヨタは、自動車会社からモビリティカンパニーへの変革を目指しており、環境問題や渋滞といった社会的課題の解決に加え、全ての人にとってスマートで豊かなモビリティ社会を、皆様とともに実現していきたいと考えています。

この大変革のキーワードとして、「CASE」があります。頭文字となっている4つの領域（Connected, Autonomous, Shared/Service, Electric）の進展が、商品構造やビジネスモデルの変化を引き起こしています。

トヨタは、オリンピックおよびパラリンピックのワールドワイドパートナーです。東京2020オリンピック・パラリンピック競技大会に、①すべての人に移動の自由を（Mobility for All）、②水素社会の実現を核としたサステナビリティ（環境・安全）、③トヨタ生産方式を活用した大会関係者輸送支援をテーマとして、CASEに代表される技術進化を含め、モビリティ社会の未来の方向性を提案したいと考えています。

---

このような技術のなかで、Electric すなわち、「電動化」に対する技術革新は、すべての基盤技術となるものです。

1997年に、トヨタが『21世紀の車』としてプリウスを提案してから早や20年が経ち、4代目が各国を走っております。さらに、2014年には世界に先駆けてFCV(燃料電池自動車)の量産を行ってきました。今後、2020年からのEV(電気自動車)の本格展開、さらに、2030年には、電動化比率>50%、EV・FCV比率>10%で、トータル550万台以上の電動車供給を目指しています。CO<sub>2</sub>排出量削減に不可欠な電動車が広く使われるためには、各国・各地域のエネルギー事情や政策、ユーザーの好みなど、多様なニーズに応えていくことが大切です。

現在、市販されているEVには、ハイブリッド車の約50倍の容量の電池が搭載されています。電動車両550万台以上の目標達成には、従来をはるかに超えた電池の供給体制が必要です。パートナーとなる企業の皆様とも協力しながら、体制づくりのペースをさらに加速していかなければいけないと考えています。

さらに、大量に市場投入される電池の後活用を考える必要があります。自動車用としてのリユースサイクルだけでなく、他業界でのリユースも含めて進めていきます。

また、大量生産により、資源リスクも問題となってくるため、新しい技術開発によって希少資源の使用を減らし、コスト低減を図っていかねばなりません。

この「電動化」と併せて、先進安全と、自動運転などの「知能化」や「情報化」「コネクテッド」を融合させ、トヨタは、モビリティを「自動車」から「移動の可能性」と捉え直し、「自動車会社」の枠を超えた「モビリティカンパニー」として、新しい価値を考案・提供していきます。例えば、災害時に電動車が必要な場所で大きな電力とそれに関連するさまざまなサービスを提供できれば、モビリティは社会の一部としてこれまでと異なる可能性を示すことができると思います。地球全体を「Home」と考え、必要とする方へモビリティのさまざまな可能性を提案し、よりよいモビリティ社会を実現したいと考えます。

## 将来の電池技術 ～燃料電池と蓄電池

The Battery Technologies of the Future - Fuel Cells and Storage Batteries

小東 哲也\*<sup>1</sup> 阿部 真知子\*<sup>1</sup>  
Tetsuya Kohigashi Machiko Abe

### 1 はじめに

昨今、国内外において、「排出ガスによる大気汚染」「CO<sub>2</sub> 排出による地球温暖化」「化石燃料の枯渇」という危機感から、電動車へ注目が集まっている。電動車の実用化には長い歴史があり、さまざまな試行錯誤が行われてきた。

1769年、フランス陸軍の技術大尉であったニコラス・キュニョーが、世界初と認められている三輪の木製自動車を製作した。蒸気の圧力でピストンを動かして前輪を駆動する仕組みで、自動車の最初の動力源は蒸気であった。

その後、1800年代前半には電気自動車開発への挑戦が試みられたが、当時は実用に至るまでのものは作られなかった。しかし、1873年、世界で初めて、イギリスのロバート・ダビットソンが実用的な電気自動車を製造した。さらに、1886年には、ドイツのカール・ベンツが作製した三輪のガソリン自動車の特許が世界で初めて認められ、1893年には四輪のガソリン自動車が誕生した。

1800年代当時、蒸気機関車も電気自動車も競争力を保っており、自動車に適した動力源が何であるかは、誰にも分からなかった。そのような状況で、1908年、アメリカのヘンリー・フォードが陣頭指揮を執って製作した、小型で丈夫なガソリン自動車のT型フォードがデビューし、1915年には累計生産台数100万台を超え、圧倒的な売れ行きを示した。当時のT型フォードが使用されている一例を、**図1**に示す。T型フォードの登場により、ガソリン自動車の時代が到来し、蒸気機関車と電気自動車は市場から次第に姿を消していった。

1900年代、ガソリン自動車が飛躍的な発展を遂げる一方で、当時も「排出ガスによる大気汚染」「CO<sub>2</sub> 排出による地球温暖化」「化石燃料の枯渇」は課題と認識され、各国で研究が続けられていた。



図1 干し草を運ぶ Model T (1921年)<sup>(1)</sup>

トヨタでも、創業期から化石燃料に頼らないエネルギーの必要性を認識し、その危機意識を受け継いできた。豊田佐吉は1925年、蓄電池の発明に対する懸賞金を帝国発明協会に寄付しており、1935年には、同協会が、佐吉の発案になる「理想的蓄電装置百万円懸賞募集」に基づき、「蓄電池発明懸賞募集」を行った。帝国発明協会は蓄電池に関する研究を行うため、専門研究室を研究所内に設置した。

豊田喜一郎も佐吉の遺志を引き継いで、1939年、東京の芝浦に蓄電池研究所を設置、電気自動車用蓄電池の研究に着手し、研究開発を推進してきた。その後も、ガソリン車の普及が拡大する一方で、環境問題が深刻化する将来を見据え、蓄電池を乗せた自動車の研究はトヨタグループ内で継続され、1993年にタウンエースEV、1996年にRAV4EVの実用化として実を結んだ。

1997年にハイブリッド車(HV)プリウスを世に送り出し、HV時代の幕を開いた。以降、プリウスは環境対応車として世界を牽引し、プリウスに次ぐモデルの展開も加速させている。また、2014年には燃料電池自動車(FCV)MIRAIの販売を開始した。

2017年、トヨタは電動車普及に向けたチャレンジを発表した。**図2**に、将来の電動車普及シナリオを示す。

\*<sup>1</sup> 先進技術開発カンパニー 先進技術統括部

2030年に販売するトヨタのクルマの内、50%以上を電動車両、10%以上をEV（電気自動車）、FCVとする目標である。目標達成のためには、電動車両のコア技術である、モーター、電池、パワーコントロールユニットの開発が重要である。本稿では電池に着目し、燃料電池と蓄電池について概観する(2)-(4)。

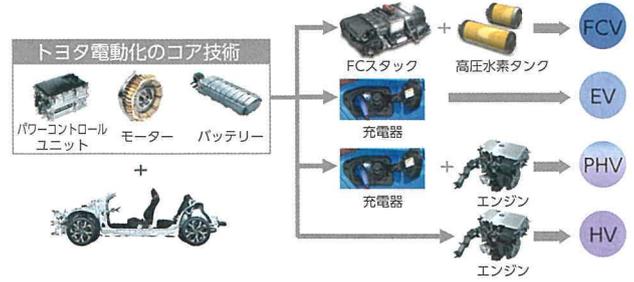


図4 各電動車の比較

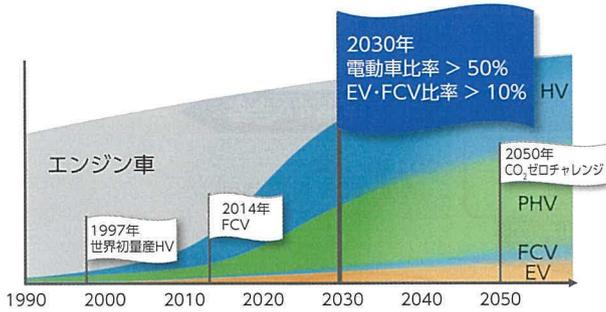


図2 将来の電動車普及シナリオ

## 2 電動車両、燃料電池、蓄電池の関係

お客様のニーズの指標の一つとして、移動距離を横軸、車両サイズを縦軸にとったイメージ図を、図3に示す。電動車両が幅広く使われるためには、各国・各地域のエネルギー事情や政策、お客様の好みなど、多様なニーズに応えていくことが大切であり、EV・HV・FCV・PHV（プラグインハイブリッド車）といった幅広いラインナップの電動車の開発を進めている。各電動車の比較を、図4に示す。蓄電池と燃料電池両方の開発を行うことで、モビリティの幅が広がり、お客様の選択肢が増える。

3章以降は、各電池の特色と今後の方向性を述べる。

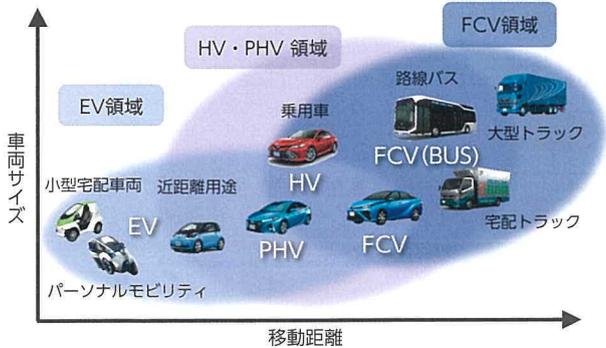


図3 移動距離と車両サイズの関係

## 3 燃料電池とは

燃料電池は、水素と酸素を化学反応させて電気をつくる発電装置である。化学反応式を下記に示す。



反応過程において、水を生成するのみで、CO<sub>2</sub>排出量はゼロである。

また、水素は多様な一次エネルギーから製造できるため、化石燃料のように枯渇の心配がなく、安定供給が見込まれる。

そこで、世界各国で、環境に優しく、安定した供給が期待できる水素のエネルギー利用が始まっている。

## 4 燃料電池開発の取り組み

燃料電池の研究の歴史は古く、19世紀にヨーロッパで始まった。実用化の起点になったのは1960年代の米国の宇宙開発であり、宇宙船ジェミニ5号やアポロ計画に採用された。

その後、地上用途としての燃料電池開発の機運が高まり、1987年、Ballard Power Systems Inc.社がフッ素系イオン交換樹脂を電解質膜に用いた固体高分子形燃料電池を開発した。

近年では、各国でFCV・移動体向けの燃料電池や制御システムの技術開発が進んでいる。

現在、経済産業省においては、水素社会の実現に向け、水素エネルギーの利用拡大に向けた技術開発などを推進しており、より戦略的・効果的に推進するための水素基本戦略を策定している(図5)。水素利用の飛躍拡大を目指し、定置用燃料電池（家庭用、業務・産業用）やFCV・移動体に対して、普及目標が設定されている。

特集

トヨタではFCVの開発に取り組み、1996年に燃料電池と水素吸蔵合金タンクを搭載したFCEV-1を開発した。2002年12月には、自社開発の燃料電池「トヨタFCスタック」を搭載したトヨタFCHVを日米で限定販売したことで実用化への第一歩を踏み出し、2005年に国内で初めて型式認証を取得した。2014年には、FCVを「究極のエコカー」と位置づけ、MIRAIの販売を開始した。車載した水素と空気中の酸素の化学反応で生じる電気

でモータを駆動し、走行する。図6に、FCVの仕組みのイメージ図を示す。トヨタでは、燃料電池スタック、高圧水素タンクなど、FCVの心臓とも言えるFCシステムを自社開発している。MIRAIに搭載した燃料電池スタックは、世界トップレベルの性能を実現するとともに、車両シートの下に配置できるほど小型化が進んだ。また、水素需要の拡大とインフラ整備への貢献を目的として、台数の多い乗用車に向けた燃料電池の技術を、商用車に応用してい

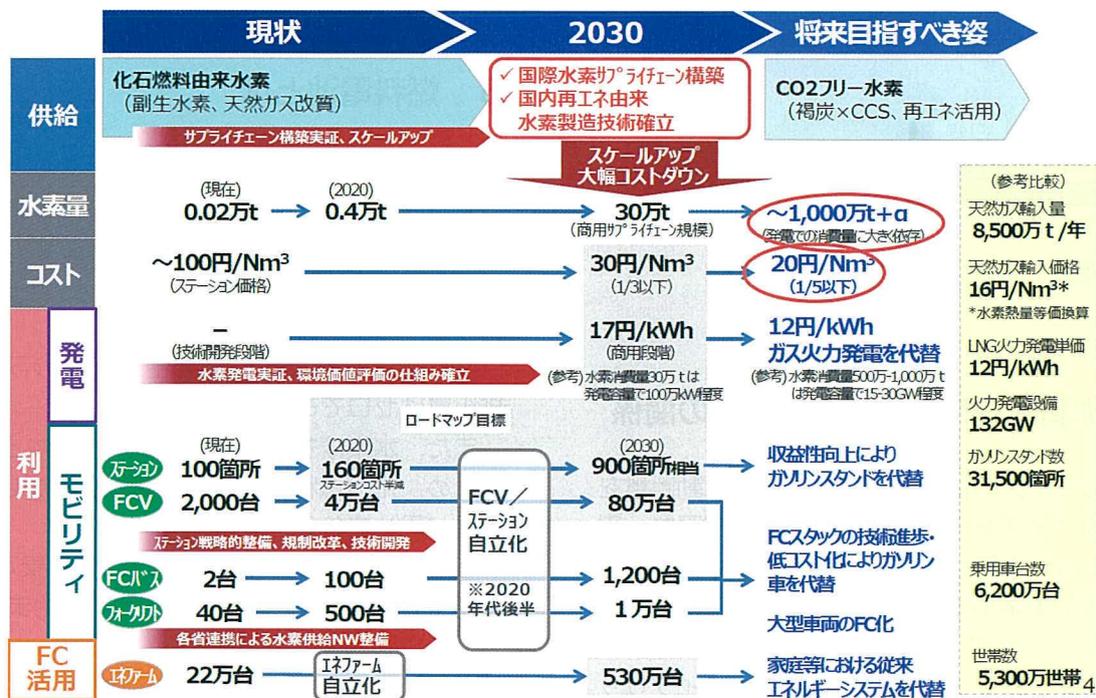


図5 水素基本戦略(5)

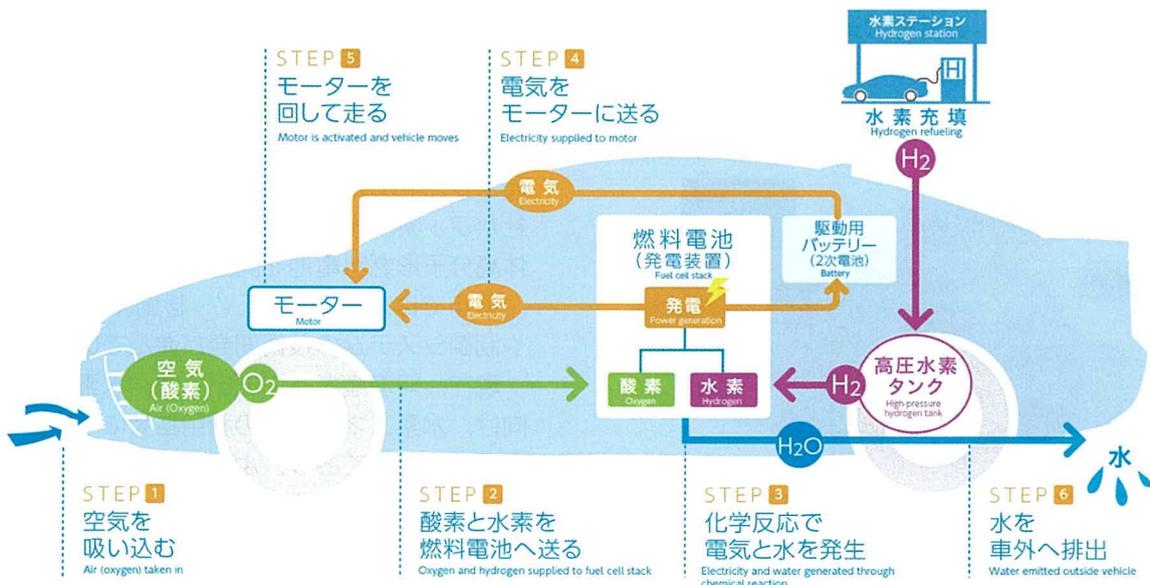


図6 FCVの仕組み

る。応用例を述べる。

2017年に、元町工場へ豊田自動織機製のFCフォークリフトを2台導入し、2018年にはさらに20台導入するとともに、同工場内にFCフォークリフト専用の水素ステーションを新設した。

2017年に、アメリカ・カリフォルニア州でFC大型商用トラック実証実験を行い、2018年には改良型のFC大型商用トラックの実用可能性の検証を開始した。また、同年、東京都にFCバスSORAを導入した。

水素ステーションの整備、地域交通におけるFCV・FCバスの導入、鉄道車両へのFC技術の応用など、水素活用の幅広い取り組みを行うため、2018年9月に、トヨタとJR東日本は、鉄道と自動車のモビリティ連携を軸とした包括的な業務連携の基本合意を締結した。

このように、FCVは市場で広がりつつあるが、本格普及に向けた今後の課題は、FCVのコスト削減と水素ステーションの整備である。

## 5 燃料電池の普及に向けて

FCVの本格普及に向けた、コスト削減と水素ステーションの整備に関する取り組みを述べる。

HVの本格的な普及においても、コスト削減は大きな課題の一つであったが、トヨタは世界に先駆けて小型化・軽量化・コスト削減を進めてきた。FCVは、FC技術とHV技術の集合体である。FC専用部品のコスト削減に加え、HV技術をFCVに应用することにより、FCVのコスト削減を加速させていく。

水素ステーションの普及については、戦略的整備、効率的な運営などが挙げられる。2018年2月に、トヨタを含むオールジャパンで水素ステーション整備を推進する、「日本水素ステーションネットワーク合同会社（JHyM）」が設立された。水素ステーション整備に向けて、インフラ事業者、自動車会社、金融投資家などが連携する、世界初の取り組みである。このようなオールジャパンでの取り組みは、FCVの普及と水素ステーションの早期自立化を促進するだけでなく、わが国の水素社会実現に貢献することになると考える。

今後、FCVと水素ステーションの課題を解決し、好循環を創出することで、燃料電池車両が市場に本格普及すると考える。

## 6 蓄電池とは

電池は、使い捨て電池である一次電池と、繰り返し充放電して使用可能な二次電池（蓄電池）に分けられる。1800年にボルタの電池が登場し、乾電池として携帯に便利な形まで改良が重ねられ、蓄電池化にまで進展した。充放電可能な蓄電池として代表的なものは、ニッカド電池とニッケル水素電池、リチウムイオン電池である。

ニッカド電池は1899年に登場し、1970年代から急速に成長した、シェーバーなどの小型民生用コードレス機器の電源として大きく生産量を伸ばした。しかし、その後登場したニッケル水素電池やリチウムイオン電池と比較して、容量あたりの重量が大きいなどの欠点がある。

ニッケル水素電池は、ニッカド電池のエネルギー密度の1.5倍を有し、ニッカド電池に代わる高容量電池として登場し、1990年より実用化されている。

リチウムイオン電池は、1991年に携帯電話に搭載され、その後、携帯電話やパソコン電源に広く使われているとともに、高エネルギー密度と高出力密度の達成に向けて、多大な努力が払われてきた。近年では、定置型電源用および電気自動車用の大型・大容量のリチウムイオン電池の実用化に至っている。これは、小型電池技術の進歩により、大型電池の実用化見通しがついてきたことと相まって、環境・エネルギーの観点から社会的ニーズが高まってきたことが大きな原動力になっているといえる<sup>(6)-(10)</sup>。

## 7 蓄電池開発の取り組み

蓄電池の研究開発は、材料や構造の進化はもちろんのこと、電動車向けの蓄電池評価手法や制御システムの開発と合わせてさらに発展を続け、用途に合わせた性能をもつ蓄電池を開発する段階に至っている。

本章では、HV・PHV・EV向けの蓄電池について述べる。各用途によって蓄電池に求められる今後の性能は異なるものの、今後の電動車普及には高出力化・低コスト化は必須であり、特にEV向けの電池には、航続距離を延ばすための高容量化が今後の課題である。

## 7.1 HV 向け蓄電池

プリウス（2015年モデル）では、ニッケル水素電池とリチウムイオン電池の2種類をラインナップした。ニッケル水素電池は、電極材料およびバッテリーケース構造の新規開発により、充電性能を向上させた。また、リチウムイオン電池は、電極材料を新規開発することでセル抵抗の低減に成功し、出力性能が大幅に向上している。

ニッケル水素電池は、低温時にも安定した性能を発揮できることが特徴であり、リチウムイオン電池は、エネルギー密度（一定重量または容積に蓄えられるエネルギーの量）が比較的高いことが特徴である。

トヨタでは、お客様のご要望や地域のニーズに合わせ、それぞれに必要な特性に応じて、電池を使い分けている。

## 7.2 PHV 向け蓄電池

プリウス PHV には、スムーズでパワフルなEV走行の実現を目的に、小型、軽量、高容量のリチウムイオン電池を搭載した。

2016年に米国で「プリウス Prime」として発売された、2代目となるプリウス PHV は、2015年秋から2016年秋にかけてデビューした新型車のなかで最も環境性能に優れた1台に選ばれ、「2017ワールドグリーンカーオブザイヤー」を受賞した。

## 7.3 EV 向け蓄電池

EV 向け蓄電池には、PHV 向け蓄電池以上に高容量であることが求められる。リチウムイオン電池のさらなる開発を進め、性能向上を行うとともに、次世代電池の開発も進める必要がある。

# 8 蓄電池開発の今後の方向性

トヨタは、電動車の普及のためには電池の革新が必要と考え、蓄電池の高出力化、高容量化に取り組んでおり、全固体電池、金属空気電池、ナトリウムイオン電池、マグネシウム電池などの研究開発を行っている。現時点では、「全固体電池」が最も実用化（車載可）に近いと考えられ、生産技術も含めて研究開発に取り組んでいる。

一般的なリチウムイオン電池は、正極活物質にリチウム含有遷移金属酸化物、負極活物質に炭素材料、有機溶媒に電解質としてリチウム塩を溶かした電解液を用いた電池である。

一方、全固体電池は、電解液部分を固体電解質に置き換えた電池である（図7）。電解液中のリチウム量よりも固体電解質中のリチウム量が多く、同じ時間に移動できるリチウム量は全固体電池の方が多くなり、電池の小型化が進む可能性を秘めている。電池の小型化が進むことで、一定空間にこれまでより多くの電池を搭載可能となり、高容量化が進むと考えられる。

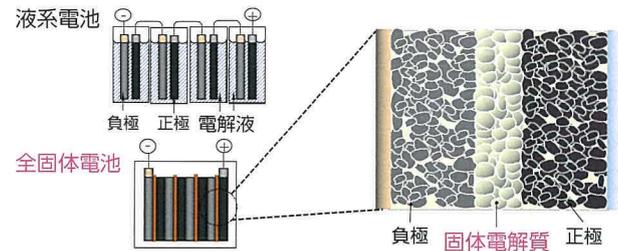


図7 全固体電池の概略図

# 9 おわりに

モビリティの多様化を実現するための基盤技術である燃料電池と蓄電池の開発は非常に重要であり、燃料電池と蓄電池の発展なしに電動車の普及は進まないと考えられる。

一方、燃料電池と蓄電池の発展だけでは電動車の普及には至らず、電動車に載せた燃料電池と蓄電池が最高のパフォーマンスを発揮できる制御システムや、インフラ環境整備などが必須である。

世界各国で電動車開発が活発になっている現状をふまえ、今後は自社のみならず、グループ各社、仕入先、関係会社、研究機関と一丸となり、電動車のさらなる普及を世界で促進していきたい。

## ■参考文献

- (1) F. Clymer : Henry's Wonderful Model T, 1908-1927
- (2) GAZOO. “よくわかる自動車歴史館”.  
[https://gazoo.com/article/car\\_history/150327\\_1.html](https://gazoo.com/article/car_history/150327_1.html)
- (3) トヨタ自動車：トヨタ自動車 75 年史, 2013
- (4) トヨタ産業技術記念館. 豊田佐吉生誕 150 周年特別企画. 特別展「引き継がれる佐吉の志 ～私たちの暮らし、トヨタグループと～」, 2017, 解説パネル
- (5) 経済産業省. 水素基本戦略, 2017, <http://www.meti.go.jp/press/2017/12/20171226002/20171226002-1.pdf>
- (6) 小久見善八ほか：はじめての二次電池技術, 工業調査会, 2001
- (7) K. Mizushima, et al. :  $\text{Li}_x\text{CoO}_2$  ( $0 < x < 1$ ): A new cathode material for batteries of high energy density, Mater. Res. Bull. 15, 1980, 783 - 789.
- (8) R. Kanno, et al. : Carbon as negative electrodes in lithium secondary cells, J. Power Sources 26, 1989, 535 - 543.
- (9) M. Mohri, et al. : Rechargeable lithium battery based on pyrolytic carbon as a negative electrode, J. Power Sources .26, 1989, 545 - 551.
- (10) J.R. Dahn, et al. : Rechargeable  $\text{LiNiO}_2$ /Carbon Cells J. Electrochem. Soc. 138, 1991, 2207 - 2211.

## ■著者



小東 哲也



阿部 真知子

# 厚膜電極構造をもつ全固体電池

All-Solid-State Batteries with Thick Electrode Configurations

加藤 祐樹 \*1  
Yuki Kato

塩谷 真也 \*2  
Shinya Shiotani

森田 圭祐 \*1  
Keisuke Morita

## 要旨

本稿では、厚さ 600  $\mu\text{m}$  の正極層を有し、室温で容量 15.7 mAh  $\text{cm}^{-2}$  の、厚膜電極全固体リチウムイオンセルの作製に成功した事例について説明する。加えて、2つの異なる材料を固体電解質に使用し、イオン導電率が放電性能にどのような効果をもたらすか、実験した。また、容量・電流データから、屈曲度に関する重要な形態情報を電気化学的に抽出した。屈曲度がセル性能に与える影響についても、定量的に分析した。

## Abstract

This article describes the preparation of thick electrode all-solid-state lithium-ion cells in which a large geometric capacity of 15.7 mAh  $\text{cm}^{-2}$  was achieved at room temperature using a 600  $\mu\text{m}$ -thick cathode layer. The effect of ionic conductivity on the discharge performance was then examined using two different materials for the solid electrolyte. Furthermore, important morphological information regarding the tortuosity factor was electrochemically extracted from the capacity-current data. The effect of tortuosity on cell performance was also quantitatively discussed.

キーワード 全固体電池, 厚膜電極, イオン輸送, 屈曲度

## 1 背景

電極の厚膜化は、集電体やセパレータの相対量を最小化できることから、電池のエネルギー密度向上のために有効な方法の一つである<sup>(1)-(5)</sup>。しかし、それを実現するためには、厚膜電極のイオンや電子の輸送制限による出力特性が課題となる。現在、厚膜電極をもつリチウムイオン電池の出力特性は、配向性カーボン、金属箔、多孔質カーボンなどの3次元構造基板の採用により、改善されている<sup>(2)-(4)</sup>。しかし、電流密度の高い領域においては、厚膜電極システムのレート能力は、液体電解質中のイオン拡散により、依然として制限される<sup>(4)(5)</sup>。また、リチウムイオン輸率の低さ ( $t_{\text{Li}^+} < 0.4$ ) によって、充電・放電中、システム全体のリチウムイオン濃度勾配が発生する<sup>(6)(7)</sup>。

全固体電池は、無機固体電解質内のリチウムイオン輸率 ( $t_{\text{Li}^+}$ ) が高いことから、厚膜電極システムに向けた新たな選択肢と考えられている。さらに、固体電解質のなかには、電解液に比べ、イオン導電

率の高いものがあることも分かっており、電解液を使用したリチウムイオン電池より、レート能力が高出力型全固体電池の製作が可能となる<sup>(8)</sup>。厚膜電極構造をもつ全固体電池はいくつか報告されているが、イオン導電率やイオンパスのモルフォロジーを含む、イオン輸送に関する定量分析はまだ行われていない<sup>(8)(9)</sup>。本稿では、これまでに発表されているものに比べて、さらに単位面積当たりの容量が高い全固体電池について解説する<sup>(8)(10)-(12)</sup>。また、イオン導電率や電極形態が、全固体電池の放電性能にどのような影響をもたらすかについても解説する。

表 1 採用した固体電解質の詳細

固体電解質	構造	イオン導電率 ( $\kappa / \text{mS cm}^{-1}$ )
SE1	$\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$	3.2
SE2	$75\text{Li}_2\text{S}-25\text{P}_2\text{S}_5$	0.28
SE3	$30\text{LiI}-70(0.75\text{Li}_2\text{S}-0.25\text{P}_2\text{S}_5)$	1.2

\*1 先進技術開発カンパニー 先端材料技術部

\*2 パワートレーンカンパニー 電池材料技術・研究部

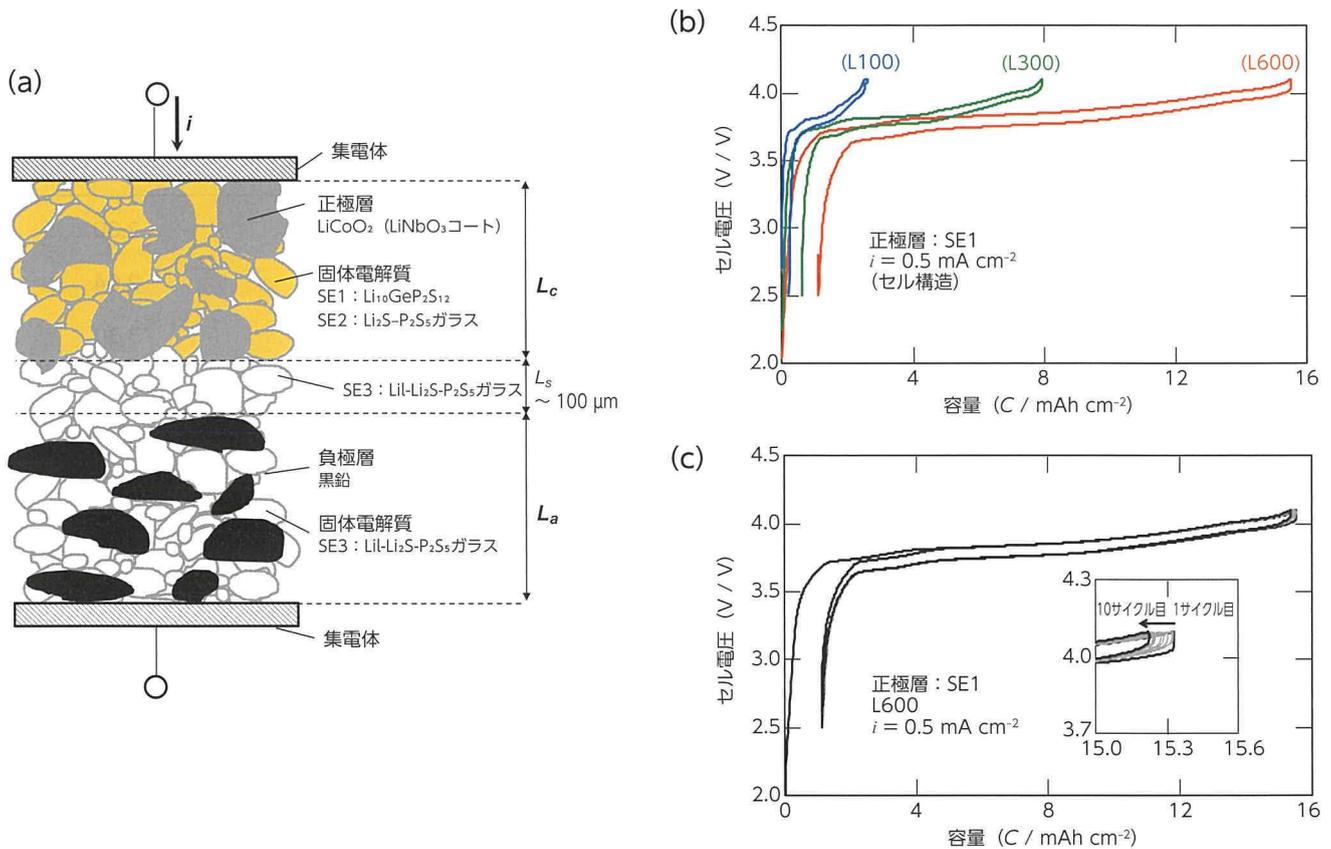


図 1 (a) 実験構造の略図、(b) 厚膜電極の充電・放電容量、(c) L600 構造のサイクル特性

表 2 正負極層に使用するために準備した粉末混合物

材料	密度 ( $\rho / \text{g cm}^{-3}$ )	電極内質量分率 (wt%)		電極内体積分率 (vol%)	
		正極層	負極層	正極層	負極層
LiCoO <sub>2</sub> (LiNbO <sub>3</sub> コート)	5.05	61	-	38.1	-
アセチレンブラック	2.00	3	-	4.8	-
固体電解質	2.00	36	54	57.1 ( $\epsilon=0.57$ )	57 ( $\epsilon=0.57$ )
黒鉛	2.27	-	46	-	43

## 2 結果と考察

図 1 に、使用したセルを図解し、表 1 に、異なるイオン導電率をもつ固体電解質の詳細を記載する<sup>(13)-(15)</sup>。正極活物質には LiNbO<sub>3</sub> コートした LiCoO<sub>2</sub> を、負極活物質には黒鉛を、それぞれ使用した<sup>(16)</sup>。表 2、3 に示すとおり、数種類の全固体電池を、電極層の厚さを系統的に変化させて作製した。セパレータ層(Ls)の厚さは 100 μm で一定と

した。

図 1 (b) は、固体電解質として SE1 を使用し、電流値 0.5 mA cm<sup>-2</sup> で作動させた全固体電池の充放電曲線を示す。厚膜電極 L600 (電極面積当たりの活物質質量 LiCoO<sub>2</sub> = 115.4 mg cm<sup>-2</sup>) においても、この電流密度で理論容量にてサイクルできたことが分かる。定電流モードにおいて、充電容量が理論容量の 95% 以上、放電容量は 93% であった。図 1 (c) は、L600 セルのサイクル試験結果である。

表 3 正負極層の特性

構造	正極層		負極層		容量 (C/mAh cm <sup>-2</sup> )
	厚さ (L <sub>c</sub> /μm)	LCO 負荷 (M <sub>LCO</sub> /mg cm <sup>-2</sup> )	厚さ (L <sub>a</sub> /μm)	黒鉛負荷 (M <sub>C</sub> /mg cm <sup>-2</sup> )	
L75	~ 75	14.5	~ 66	6.4	2.00
L100	~ 100	19.3	~ 88	8.6	2.64
L125	~ 125	24.1	~ 109	10.7	3.30
L150	~ 150	28.9	~ 131	12.8	3.96
L200	~ 200	38.6	~ 174	17.1	5.29
L250	~ 250	48.2	~ 219	21.4	6.60
L300	~ 300	57.7	~ 262	25.6	7.93
L600	~ 600	115.4	~ 524	51.3	15.7

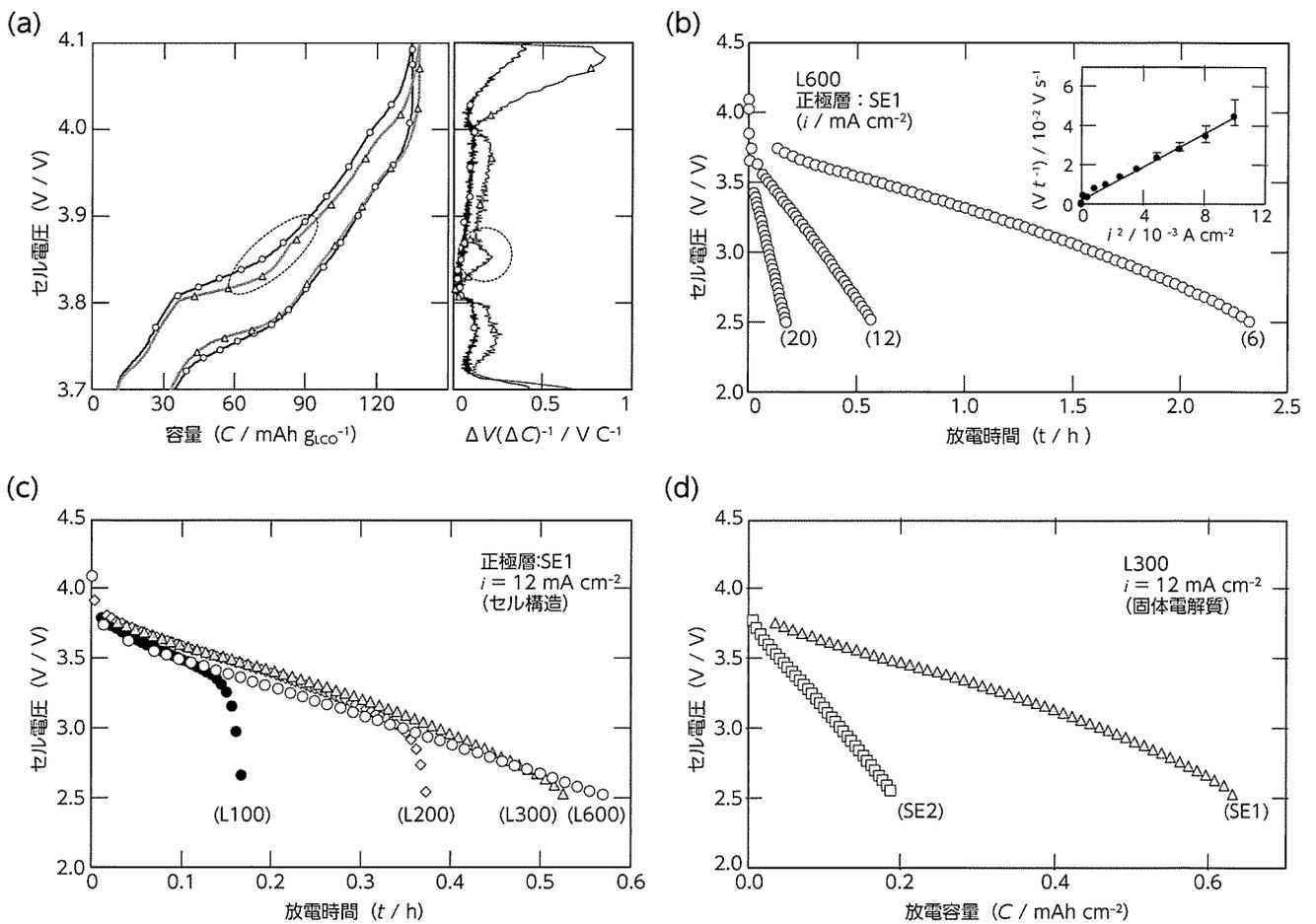


図 2 全固体セルの充放電曲線：(a) 厚膜電極の充放電曲線（放電挙動は正極層の (b) 電流密度、(c) 電極厚さ、(d) イオン導電率の値を変更することで調査）

この条件下 ( $0.5 \text{ mA cm}^{-2}$ ) で、良好なサイクル特性を示した (充放電効率約 100% にて 10 サイクル終了後の容量が 99% 以上)。このことから、本試験で用いた電極構成においては、最低 10 サイクルは電極の膨張収縮に伴う体積変化が吸収されたことが分かる。

図 2 (a) は、 $0.5 \text{ mA cm}^{-2}$  における L600, L300 セルの充放電特性を示す。電極を厚くすることで、過電圧が大きくなることが分かった。電解質におけるイオン輸送によって、エネルギー損失が発生しているためだと考えられる。L300 セルでは、黒鉛のステージ構造に対応する電圧の平坦域が確認できたが、L600 構造ではより緩やかな勾配であることが分かる。特に、約 3.8V における  $\Delta V/\Delta C$  によく表れている (図 2 (a) 右)。この 2 つのセルの挙動には、イオン輸送に必要な過電圧によって起こる、電極厚さ方向における活物質粒子の充電状態の分布が反映されている。

図 2 (b) に、異なる放電電流密度 ( $i$ ) において SE1 を使用して作製した、L600 セルの放電曲線を示す。セルは、 $i=6 \text{ mA cm}^{-2}$  未満の場合にほぼ理論容量と等しくなったが、 $i=6 \text{ mA cm}^{-2}$  の場合には、理論容量の 88% である  $13.9 \text{ mAh cm}^{-2}$  の放電容量が得られた。また、 $i>6 \text{ mA cm}^{-2}$  では、直線的な放電曲線を描いた。このことは、このセルが、電極層内のイオン輸送にともなうオーム損によって反応が制限される、「オーミック限界」にあることを示唆している。これは、電池反応において、活物質内の拡散より電極内イオン輸送の影響が大きい場合にみられる現象である。LiCoO<sub>2</sub>・黒鉛系の全固体電池では、電極層の薄い電池系において (例: 厚さ  $25 \mu\text{m}$ )<sup>(8)</sup>、電流密度  $50 \text{ mA cm}^{-2}$  を超える値で作動することが報告されており、活物質内の拡散は  $50 \text{ mA cm}^{-2}$  相当の電流まで応答可能と考えられる。厚膜電極系においては、粒子当たりの電流密度は膜厚が増すほど減少するので、活物質内拡散よりは電極内のイオン輸送の影響が大きくなり、オーミック限界が実現されやすいと考えられる。オーミック限界にある電池の反応は、Newman ら<sup>(18)</sup>により提唱されている Reaction-zone モデルを活用することで理解できる。有効電子導電率 ( $\sigma_{\text{eff}_e}=0.3 \text{ S cm}^{-1}$ ,  $\sigma_{\text{eff}_a}=0.7 \text{ S cm}^{-1}$ ) が固体電解質 ( $\kappa$ ) のイオン導電率に対して著しく高いことから、電圧降下は主にシステム内のイオン輸送によって発生していると考えられる。よって、オーミック限界におけるハーフセルの電圧プロファイルは、式 1 の通り表現できる。

$$V = U^0 - R_o i - \frac{t}{q \kappa_{\text{eff}}} i^2 \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $U^0$  : 充電状態の活性物質の回路電位  
 $R_o$  : 低周波抵抗  
 $q$  : 複合電極の容量密度  
 $\kappa_{\text{eff}}$  : 複合電極の有効イオン導電率  
 $t$  : 時間

電解質の体積分率  $\varepsilon$  と屈曲度  $\tau$  を織り込むことで、複合電極の有効導電率が以下の通り求められる。

$$\kappa_{\text{eff}} = \frac{\varepsilon}{\tau} \kappa \quad \dots\dots\dots (2)$$

式 1 と式 2 がどちらも屈曲度を使用していることから、このパラメータ値は放電曲線を分析することで推定できる。すなわち、オーミック限界における放電曲線の傾きには、全固体電池の電極体モルフロジーに関する直接的な情報が含まれている。式 1 は、電流の方向を加味することで、フルセルに拡張することができる (式 3)。

$$V = U_c^0 - U_a^0 - R_o i - \left( \frac{1}{q_c \kappa_{\text{eff}_c}} + \frac{1}{q_a \kappa_{\text{eff}_a}} \right) i^2 \times t \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 $c$  : 正極層相当値  
 $a$  : 負極層相当値

よって、式 3 から、放電曲線の傾きは印加された電流密度の二乗に比例することが分かる。実際に、図 2 (b) の放電曲線の傾きは、電流の二乗に相当する。また、図 2 (b) の挿入図は、放電曲線の傾きと電流の二乗の関係を示す。放電曲線の傾きが電流密度の二乗に比例することから、このセルがオーミック限界にあることが分かる。

図 2 (c) に、 $i=12 \text{ mA cm}^{-2}$  のときの異なる電極厚 (例: L100, L200, L600) 毎の放電曲線を示す。放電曲線は厚さに依存せず、ほぼ同じ傾きを示した。薄膜セル (L100) の場合において、容量の 80% 以上が放電され、この電流密度においては活性物質がほぼ完全に (脱) リチウム化されることが分かる。このことは、この電流値では活物質内の拡散は十分に速く、印加電流に応答できることを示す。すなわち、電池の性能は電極内のリチウム輸送により制限される (オーミック限界) と考えられる。このため、式 3 に示すように、放電曲線の傾

きが電極厚さに依存せず、ほぼ一定となることが分かる。また、放電曲線の傾きは Reaction-zone モデルで説明される通り、電解質のイオン導電率に大きく影響されるので、異なる導電率をもつ電解質を使用することで、放電曲線の傾きが大きく変化することが分かる (図 2 (d))。

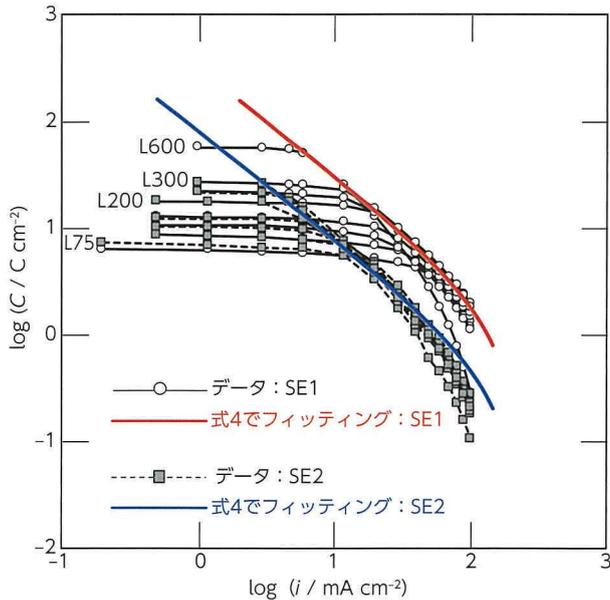


図 3 L75～L600の電極用全固体セルの電流範囲0.1～100 mA cm<sup>-2</sup>の容量・レートのプロット

次に、レート特性試験の結果を電流 - 容量の形にまとめたものを、図 3 に示す。低電流密度では、電極の厚さに応じた容量を放電できることが分かる。一方で、電流密度が大きいときは、放電容量は電極厚さに依存せず、電流密度によって一定になることが分かった。その際の容量と電流の関係は、図 3 (Log-log プロット) の傾きが勾配 - 1 の直線であることが分かった。これは、オーミック限界にある電池の典型的な挙動である<sup>(18)(19)</sup>。

カットオフ電圧  $V_{cutoff}$  を使うことで、オーミック限界にある電池系の電流 - 容量関係は、以下のとおり定義できる。

$$C = t_d j = \frac{1}{i} \times \left( \frac{1}{q_c \kappa_{eff,cj}} + \frac{1}{q_a \kappa_{eff,a}} \right)^{-1} (U_c^0 - U_a^0 - V_{cutoff} - R_o i) \quad \dots (4)$$

ここで、 $t_d$  : セル電圧が  $V_{cutoff}$  に到達する時間  
 $j$  : SE1 ( $j=1$ ) または SE2 ( $j=2$ )

表 4 に、本研究にて使用した定数の値を示す。

次に、図 3 を使って、電極モルフォロジーの情報を抽出することを試みた。 $i \ll (U_c^0 - U_a^0 - V_{cutoff}) / R_s$  の値は、導電率の違う電解質を用いた 2 つの場合の実験データ (図 3 の傾き -1 の領域) に、式 4 をフィッティングすることで求められる。

$\left( \frac{1}{q_c \kappa_{eff,cj}} + \frac{1}{q_a \kappa_{eff,a}} \right)^{-1}$  の電流領域において、容量は、

電流密度に対し反比例の関係にある。また、電極粒子拡散の影響を最小限に抑えるため、厚膜電極の使用に加え、電流密度の小さい領域でフィッティングすることが望ましい。

表 4 製作した全固体電池のセルパラメータ

$q_c / C \text{ cm}^{-3}$	953
$q_d / C \text{ cm}^{-3}$	1298
$U_c^0 / V \text{ (vs Li/Li}^+)$	4.1
$U_a^0 / V \text{ (vs Li/Li}^+)$	0.1
$V_c / V$	2.5
$R_o / \Omega \text{ cm}^2$	8

表 5 電解質層におけるイオン輸送によって求めた値

$\kappa_{eff,c1} / \text{mS cm}^{-1}$	0.73
$\kappa_{eff,c2} / \text{mS cm}^{-1}$	0.065
$\kappa_{eff,a} / \text{mS cm}^{-1}$	0.21
$\tau_{c1} (= \tau_{c2})$	2.47
$\tau_a$	3.32

SE1 と SE2 を用いた場合の正極内のイオン屈曲度がほぼ等しい ( $\tau_{c1} = \tau_{c2}$ ) と仮定することで、有効導電率  $\kappa_{eff,c1}$ ,  $\kappa_{eff,c2}$ ,  $\kappa_{eff,a}$  をフィッティングにより見積もることでき、未知数である屈曲度  $\tau$  を予測できる。通常、リチウムイオン電池では、電池反応の複雑さにより、屈曲度の予測が難しい場合がある<sup>(20)-(22)</sup>。しかし、全固体電池では電解質内の濃度勾配を無視できるので、全固体セルの電気化学的解釈を単純化し、屈曲度を求めることが比較的容易になった。表 5 に、得られた有効イオン導電率と屈曲度の値を示す。

電子顕微鏡では、正極層と負極層のどちらの固体電解質領域においても、クラックやボイドがみられた。これらは、イオン輸送経路と干渉し、屈曲度の上昇に繋がると考えられる。このようなイオン経路上の物理的障害は、全固体電池に特有のものである。

り、屈曲度に対する影響は、今後も慎重に分析すべきである。また、全固体電池を採用することを考えたとき、クラックの拡大に関するさらなる理解と制御が必要であり、作動中の電極処理や圧力制御が重要だということが分かる。

屈曲度やイオン導電率が全固体セル性能に与える影響は、式4により、定量的に検討できる。ケーススタディとして、以下の2つの場合を考える。(A) 屈曲度の向上 (Bruggeman 屈曲係数  $\tau = \varepsilon^{-0.5}$  で表される、クラックやポイドのない均質混合系)、(B) 導電率の向上 (正極層および負極層ともに  $10 \text{ mS cm}^{-1}$  の高イオン伝導系)。式4から、屈曲度は電池性能に強く影響する。

(A) 均質混合系は屈曲度  $\tau$  を低減することにより、SE1の電池系で、 $i = 20 \text{ mA cm}^{-2}$  の大電流状態でも、放電容量を二倍にできると予測される。材料のイオン伝導度の改善がなくても、モルフォロジー制御により、電池性能を改善できることを示しており、電極作製プロセスの重要性を示す。具体的には、混合条件を変更し、焼結や熱プレスによって電極のポイド発生を抑えることで、電池性能を著しく向上できる。ただし、このような処理をすることで発生する、意図しない副反応の発生の有無については、検討する必要がある。サイクル寿命を考えたとき、クラックやポイドの発生を抑えるため作動中の圧力制御も必要となると考えられる。

(B) イオン導電率も、電池性能に大きく影響する。理論上、正負極層ともに  $10 \text{ mS cm}^{-1}$  の電解質を使用すれば、L600セルは、 $30 \text{ mA cm}^{-2}$  にて全容量を放電可能である。現在、 $10 \text{ mS cm}^{-1}$  よりも大きな値を示す材料が報告されている<sup>(8)(13)</sup>が、一般的に、そのような材料は焼結やホットプレスによって高緻密化された状態でイオン伝導度を測定しており、コールドプレスによって緻密化した状態で  $10 \text{ mS cm}^{-1}$  を超えた例はまだ少ない。このことから、コールドプレスにおいても高い導電率を発現する材料の研究開発が、厚膜全固体電池には特に望まれる。

### 3 まとめ

結論として、厚さ  $600 \mu\text{m}$  の正極層をもつ厚膜電極全固体リチウムイオン電池を作製し、室温で作動させることに成功した。厚膜全固体電池の反応はオーミック限界状態にあり、Reaction-zone モデルを用いることで正確に説明ができることが分かった。容量・電流に関する系統的な実験と解析に加え、通常は充放電曲線からの推定の難しい、屈曲度を求めた。さらに、電池性能に対するイオン導電率や屈曲度の効果を定量分析した。

最後に、助言いただいた、東京工業大学の鈴木耕太助教、平山雅章准教授、菅野了次教授に感謝申し上げる。

本論文は、下記発表済み論文の転載である。

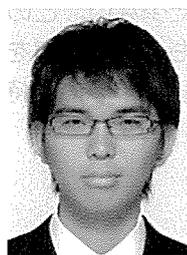
Y. Kato et al. : "All-solid-state batteries with thick electrode configurations." *J. Phys. Chem. Lett.* Vol. 9, 2018, pp. 607 - 613

#### ■参考文献

- (1) R. Moshtev, et al. : State of the art of commercial Li ion batteries. *J. Power Sources.* vol. 91, 2000, pp. 86 - 91.
- (2) Hu L, et al. : Lithium-Ion Textile Batteries with Large Areal Mass Loading. *Adv. Energy. Mater.* vol. 1, 2011, pp. 1012 - 1017.
- (3) K. Evanoff, et al. : Towards ultrathick battery electrodes: aligned carbon nanotube-enabled architecture. *Adv. Mater.* vol. 24, 2012, pp. 533 - 537.
- (4) M. Singh, et al. : Thick Electrodes for High Energy Lithium Ion Batteries. *J. Electrochem. Soc.* vol. 162, 2015, A1196- A1201.
- (5) K. G. Gallagher, et al. : Optimizing Areal Capacities through Understanding the Limitations of Lithium-Ion Electrodes. *J. Electrochem. Soc.* vol. 163, 2016, A138- A149.
- (6) T. F. Fuller, et al. : Simulation and Optimization of the Dual Lithium Ion Insertion Cell. *J. Electrochem. Soc.* vol. 141, 1994, pp. 1 - 10.

- (7) P. Arora, et al. : Comparison between computer simulations and experimental data for high-rate discharges of plastic lithium-ion batteries. *J. Power Sources*. vol. 88, 2000, pp. 219 – 231.
- (8) Y. Kato, et al. : High-power all-solid-state batteries using sulfide superionic conductors. *Nat. Energy*. vol. 1, 2016, 16030.
- (9) A. Kubanska, et al. : Effect of composite electrode thickness on the electrochemical performances of all-solid-state li-ion batteries. *J. Electroceram*. vol. 38, 2017, pp. 189 – 196.
- (10) W. Zhang, et al. : The Detrimental Effects of Carbon Additives in  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ -Based Solid-State Batteries. *ACS Appl. Mater. Interfaces*. vol. 9, 2017, pp. 35888 – 35896.
- (11) A. Sakuda, et al. : Interfacial Observation between  $\text{LiCoO}_2$  Electrode and  $\text{Li}_2\text{S} - \text{P}_2\text{S}_5$  Solid Electrolytes of All-Solid-State Lithium Secondary Batteries Using Transmission Electron Microscopy. *Chem. Mater*. vol. 22, 2010, pp. 949 – 956.
- (12) T. Ohtomo, et al. : All-solid-state lithium secondary batteries using the  $75\text{Li}_2\text{S} \cdot 25\text{P}_2\text{S}_5$  glass and the  $70\text{Li}_2\text{S} \cdot 30\text{P}_2\text{S}_5$  glass-ceramic as solid electrolytes. *J. Power Sources*. vol. 233, 2013, pp. 231 – 235.
- (13) N. Kamaya, et al. : A lithium superionic conductor. *Nat. Mater*. vol. 10, 2011, pp. 682 – 686.
- (14) F. Mizuno, et al. : High lithium ion conducting glass-ceramics in the system  $\text{Li}_2\text{S} - \text{P}_2\text{S}_5$ . *Solid State Ionics*. vol. 177, 2005, pp. 2721 – 2725.
- (15) K. Takada, et al. : Solid-state lithium battery with graphite anode. *Solid State Ionics*. vol. 158, 2003, pp. 269 – 274.
- (16) N. Ohta, et al. :  $\text{LiNbO}_3$ -coated  $\text{LiCoO}_2$  as cathode material for all solid-state lithium secondary batteries. *Electrochem. Commun*. vol. 9, 2007, pp. 1486 – 1490.
- (17) G. Oh, et al. : Bulk-Type All Solid-State Batteries with 5 V Class  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$  Cathode and  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  Solid Electrolyte. *Chem. Mater*. vol. 28, 2016, pp. 2634 – 2640.
- (18) M. Doyle, et al. : Modeling the performance of rechargeable lithium-based cells: design correlations for limiting cases. *J. Power Sources*. vol. 54, 1995, pp. 46 – 51.
- (19) M. Doyle, et al. : Analysis of capacity-rate data for lithium batteries using simplified models of the discharge process. *J. Appl. Electrochem*. vol. 27, 1997, pp. 846 – 856.
- (20) C. Fongy, et al. : Electronic and Ionic Wirings Versus the Insertion Reaction Contributions to the Polarization in  $\text{LiFePO}_4$  Composite Electrodes. *J. Electrochem. Soc*. vol. 157, 2010, A1347 – A1353.
- (21) C. Fongy, et al. : Ionic vs Electronic Power Limitations and Analysis of the Fraction of Wired Grains in  $\text{LiFePO}_4$  Composite Electrodes. *J. Electrochem. Soc*. vol. 157, 2010, A885–A891.
- (22) C. Fongy, et al. : Carbon nanofibers improve both the electronic and ionic contributions of the electrochemical performance of composite electrodes. *J. Power Sources*. vol. 196, 2011, pp. 8494 – 8499.

■ 著者



加藤 祐樹



塩谷 真也



森田 圭祐

# 放射光・中性子による蓄電池炭素負極の構造相転移解析

Analysis of Structural Phase Transition of Storage Battery Carbon Negative Electrodes Using Synchrotron Radiation and Neutrons

高木 繁治 \*1

Shigeharu Takagi

特  
集

## 要旨

放射光回折および中性子回折により、充放電過程における蓄電池の炭素（グラファイト）負極のオペランド（*operando*）構造解析を行った。温度制御が可能な単セル測定治具を新規に開発し、放射光回折および中性子回折による低温 *operando* 測定を可能とした。回折パターンと  $dQ/dV$  の解析を合わせて行った結果、低温および高レート放電ではグラファイトの構造相転移（ステージ構造変化）が困難となり、多相での移行が生じやすく、電池低温性能や高レート放電性能に影響を与えると推定される結果を得た。また、X線回折（Fundamental Parameter法）を利用して結晶子サイズ分布を解析し、カーボン構造の定量化を行い、電池性能との関係を明らかにした。さらに、グラファイトの結晶性の違いによる充放電時の相転移への影響を解析した結果、グラファイトの結晶性により、多相移行の現象が異なることが判明し、グラファイトの結晶性、充放電時の構造相転移、これらと電池性能との関係について明らかにした。

## Abstract

This study used synchrotron radiation and neutron diffraction to carry out *operando* structural analysis of carbon (graphite) negative electrodes of storage batteries during the charge/discharge process. Low-temperature *operando* measurement using synchrotron radiation diffraction and neutron diffraction was enabled by the development of a new single-cell measurement tool capable of temperature control. When  $dQ/dV$  analysis was performed in accordance with the diffraction pattern, it was found that, at low-temperature, high-rate discharge, structural phase transition of the graphite (i.e., stage structure changes) is inhibited and that transition in multiple phases is facilitated. As a result, it was inferred that this structural transition affects battery low-temperature performance and high-rate discharge performance. In addition, X-ray diffraction (the fundamental parameter method) was used to analyze the crystallite size distribution and quantify the carbon structure, thereby identifying the relationship with battery performance. Furthermore, analysis of the effects on phase transition due to the crystallinity of graphite during charge and discharge found that the multi-phase transition phenomena differed due to the crystallinity of the graphite. This analysis also identified the graphite crystallinity and structural phase transition during charge and discharge, as well as the relationship between these parameters and battery performance.

キーワード 放射光回折, 中性子回折, X線回折, Fundamental Parameter法, グラファイト, 結晶子サイズ

## 1 緒言

電気自動車の普及を促進させるため、蓄電池のさらなる容量向上、低温特性向上、高率充放電特性向上が課題とされている。これらの電池性能を向上させるために、蓄電池炭素負極のリチウム挿入脱離メカニズム解明が必須であり、充放電時においてオペランド（*operando*）で構造相転移状態を調べることが重要である。温度が変化した際に、その構造相転移を解析する必要がある。放射光回折および中性子回折に適用可能な温度制御治具の開発を進めてき

た。また、蓄電池炭素負極のカーボン種により、電池性能に差異が生じることが近年、分かってきたため、蓄電池炭素負極のカーボン物性の定量化を進めてきた。電池性能に影響を与えるカーボン物性としては、Li拡散性を考慮し、カーボンの結晶性に着目して解析を進めてきた。

今回、新たに低温制御治具（ $-10^{\circ}\text{C}$ から $50^{\circ}\text{C}$ まで制御可）の開発を行い、放射光回折および中性子回折の *operando* 構造解析に成功した<sup>(1)・(4)</sup>。そして低温と室温の違い、レートによる影響、カーボンの結晶性の違いによる相転移の差異を明らかにすることを試みた。さらに、X線回折（Fundamental Parameter法<sup>(5)</sup>、以下FP法）を用いて結晶子サ

\*1 先進技術開発カンパニー 第2材料技術部

イズ（およびその分布）の定量化を行い、リチウムイオン電池低温性能との関係を解析した<sup>(6)</sup>。

また、上記の解析結果から、電池低温性能および高率充放電性能への影響を解析し、次期蓄電池用の材料開発に役立つ指針を得たので紹介する。

## 2 実験方法

### 2.1 低温における相転移解析（中性子回折によるオペランド構造解析）

中性子回折測定においては、茨城県大強度陽子加速器研究施設 J-PARC/MLF BL09 に設置されている SPICA 装置（図 1 参照）<sup>(3)</sup> を用い、QA バンクにて検出する方法で測定を行った。

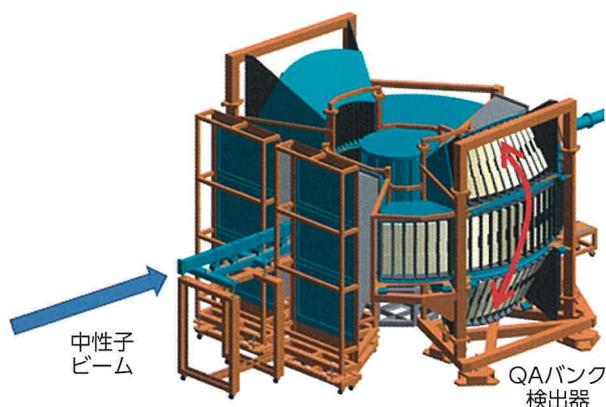


図 1 TOF (Time of Flight) 型中性子回折装置 (SPICA)

今回、単セルの外装被覆には、水素原子を含まない PCTFE (Poly Chloro Tri Fluoro Ethylene) を用いた。これにより、重水素置換電解液を使用せずとも、十分にバックグラウンドを低減（低減率 72%）させることが可能となり、S/N 比の向上による良好な中性子回折データの取得に成功した。

カーボン（グラファイト）は天然黒鉛を用い、銅集電箔上に塗布したグラファイト極を作製、対極 Li を用い、電解液に 1mol/L の  $\text{LiPF}_6$  を溶解させた EC/EMC = 3/7 (vol%) を用いて、単セル（4 層積層セル）を作製した。

単セルは、室温 (RT) において 2 サイクルの前処理（エージング処理）を行い、CC (0.1C) -CV (0.05V) にて充電 (Li 挿入) を行った後、RT と 0°C において、0.05C にて放電 (Li 脱離) 反応解析を行った。さらに、充放電時の充放電曲線から  $dQ/dV$  曲線を求め、 $dQ/dV$  ピークとの対応の解析を行った。

### 2.2 低温及び高レート放電における相転移解析（放射光回折によるオペランド構造解析）

放射光回折測定においては、「革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発 (RISING2)」が所有する大型放射光施設 SPring-8 内の BL28XU を用いて測定を行った。

カーボン（グラファイト）は天然黒鉛を用い、銅集電箔上に塗布したグラファイト極を作製、対極 Li を用いて単セルを作製した。電解液に 1mol/L の  $\text{LiPF}_6$  を溶解させた EC/EMC = 3/7 (vol%) を用い、単セルを作製した。

放射光回折を行う際のエネルギーは 25 keV とし、二次元検出器 (Rigaku 製 PILATUS 300K-W) を用いた。

今回、二次元検出器には PILATUS 300K-W を用い、カメラ長を 830mm に設定した。これにより、測定可能な角度範囲の拡大と、角度分解能の向上を両立させることが可能となり、グラファイトの (002) ピーク（主となるピーク）以外を含めた X 線回折データの取得に成功した。

単セルは RT において 2 サイクルの前処理（エージング処理）を行い、CC (0.1C) -CV (0.05V) にて充電 (Li 挿入) を行った後、RT と 0°C において、0.2C にて放電 (Li 脱離) 反応解析を行った。さらに、充放電時の充放電曲線から  $dQ/dV$  曲線を求め、 $dQ/dV$  ピークとの対応の解析を行った。また、RT において、1C にて放電 (Li 脱離) 反応解析を行った。

### 2.3 カーボン構造の定量化と電池性能との関係（X 線回折による結晶子サイズ分布の解析）

FP 法を用いて、さまざまなカーボン（グラファイト）の結晶子サイズ（およびその分布）の解析を行った。カーボン（グラファイト）は天然黒鉛 6 種と人造黒鉛 4 種を用いた。

FP 法とは、結晶子サイズと格子歪みに由来する、プロファイル形状と入射 X 線の emission profile によるプロファイル形状に、装置由来（スリット幅、試料厚さなどの測定条件）のプロファイルを畳み込んで粉末 X 線回折パターンのシミュレーションを行い、結晶子サイズや格子歪みのパラメータを最適化する方法で、対数正規分布等にて近似することで、結晶子サイズの分布パラメータを精密化することができる方法である。X 線回折測定は、Cu K  $\alpha$  (0.154nm) を用いて行った。

上記のさまざまなカーボン（グラファイト）を負極活物質とし、三元系 (NMC) 材料を正極活物質

としてコインセル（フルセル）を作製し、電池の低温特性や高レート充放電特性の評価を行った。

得られた結果から、カーボン（グラファイト）物性と電池性能との関係の解析を行った。

## 2.4 カーボン構造（結晶性）の違いによる充放電時の相転移への影響の解析

結晶性の高い試料 A（天然黒鉛）と結晶性の低い試料 B（人造黒鉛）を用い、上記と同様に対極 Li にて単セル（アルミラミネートセル）を作製し、これまでと同様の放射光回折による充放電時の *operando* 解析を行った。放射光回折を行う際のエネルギーは 25 keV で行い、二次元検出器（リガク製 PILATUS 100K）を用いた。

コインセルおよびアルミラミネートセルは、所定の充放電電流にてエージング処理を行った後、所定の温度、充放電電流にて解析を行った。

## 3 結果および考察

### 3.1 低温における相転移解析（中性子回折によるオペランド構造解析）

今回開発した低温制御治具を図 2 に示す。この低温制御治具により、低温から室温までの温度制御が可能となった。

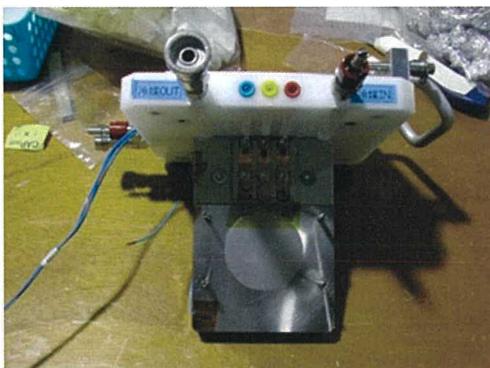


図 2 開発した中性子回折用温度制御治具

RT における、グラファイト負極の放電時（Li 脱離過程）の中性子回折結果を図 3 に示す。Li 脱離過程で、 $\text{LiC}_6$ （ $d$  値:  $3.7\text{\AA}$  付近）から  $\text{LiC}_{12}$ （ $d$  値:  $3.5\text{\AA}$  付近）を経て、C（ $d$  値:  $3.35\text{\AA}$  付近）へ変化の様子が明瞭に確認でき、グラファイトの相転移（ステージ構造変化）を明確に確認できた。

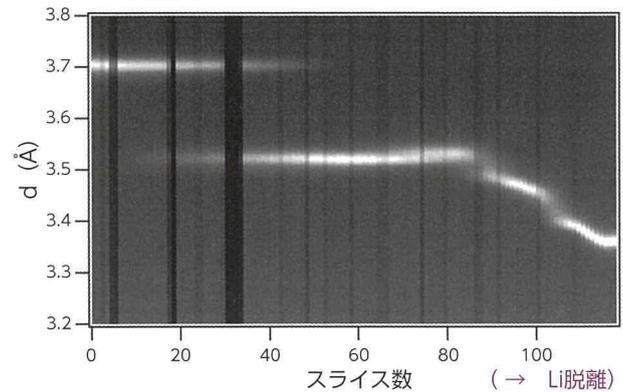


図 3 Li 脱離過程での中性子回折パターン (RT 0.05C)

充放電曲線から求めた  $dQ/dV$  曲線を図 4 に示す。Stage 2 以降において、RT と  $0^\circ\text{C}$  における相転移に違いがあることが示唆された。また、 $dQ/dV$  と合わせた充放電時の *operando* 構造解析が可能であることが確認できた。

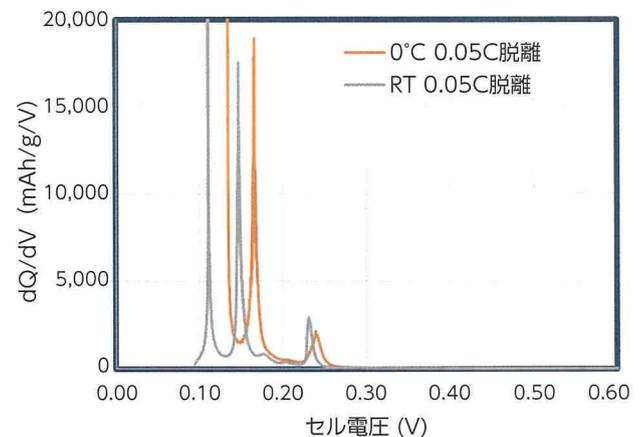


図 4 Li 脱離過程における  $dQ/dV$  曲線

中性子回折パターンのピーク分離を行った結果の一例を、図 5 に示す。ショルダー・ピークが含まれた多相で示される中性子回折パターンについても、良好にピーク分離できた。

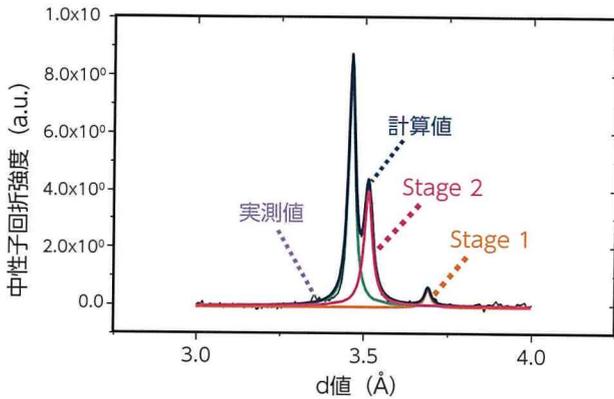


図5 中性子回折パターンのピーク分離 (一例)

Li 脱離過程において SOC (State of Charge) 5% 毎の中性子回折パターンのピーク分離を行い、ピーク面積率を用いて相の共存状態を調べた結果を、図6, 7に示す. RTにおいては、単一相でステージ構造が移行するのに対して、0°Cにおいては多相でのステージ構造移行が生じることが分かった.

上記の結果より、温度の違いによる相転移状態について、本装置構成にて *operando* 構造解析を行えることが確認できた.

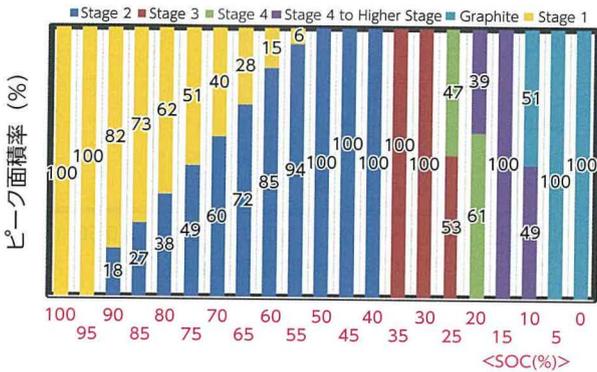


図6 Li 脱離過程での相共存状態 (RT 0.05C)

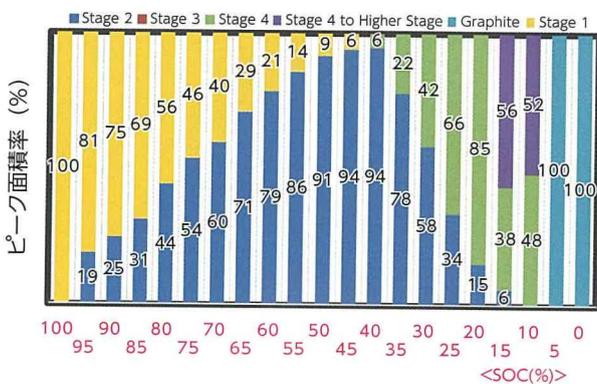


図7 Li 脱離過程での相共存状態 (0°C 0.05C)

以上から、低温では放電時 (Li 脱離過程) において多相での構造相転移が生じ、この現象が低温での電池性能に影響を及ぼすことが推定できた.

### 3.2 低温及び高レート放電における相転移解析 (放射光回折によるオペランド構造解析)

今回開発した低温制御治具を図8に示す. この低温制御治具により、低温から室温までの温度制御が可能となった.



図8 開発した放射光回折用温度制御治具

RTにおける、0.2Cにおけるグラファイト負極の放電時 (Li 脱離過程) の放射光回折結果を図9に示す. Li 脱離過程で、 $\text{LiC}_6$  ( $2\theta$ :  $7.7^\circ$  付近) から  $\text{LiC}_{12}$  ( $8.1^\circ$  付近) を経て、C ( $8.5^\circ$  付近) へ変化の様子が明瞭に確認でき、グラファイトの相転移を明確に確認できた.

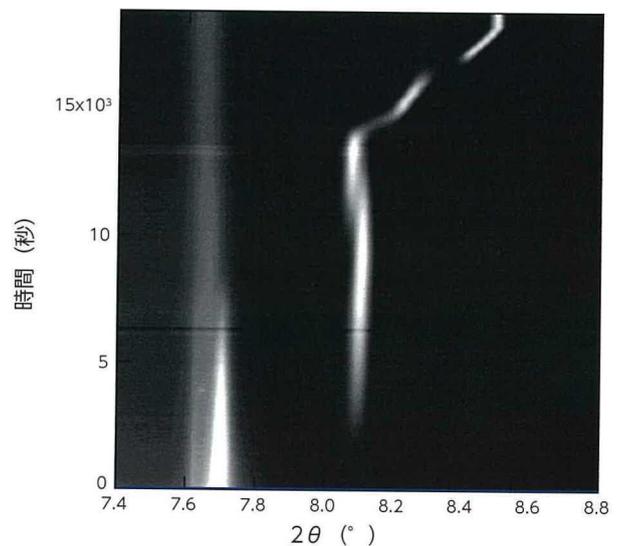


図9 Li 脱離過程での放射光回折パターン (RT 0.2C)

Li 脱離過程において、SOC 5% 毎の放射光回折パターンについて、中性子回折の解析時と同様にピーク分離を行い、ピーク面積率を用いて相の共存状態を調べた結果を、図 10、11 に示す。放電レートを 0.2C とした場合においても、RT においては単一相でステージ構造が移行するのに対して、0°C においては多相でのステージ構造移行が生じることが分かった。

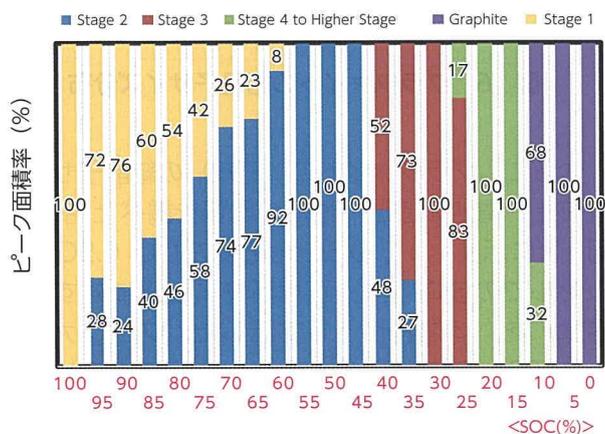


図 10 Li 脱離過程での相共存状態 (RT 0.2C)

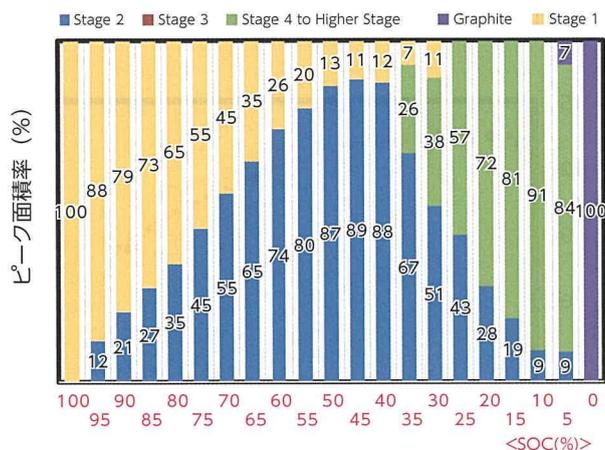


図 11 Li 脱離過程での相共存状態 (0°C 0.2C)

RT の 1C におけるグラファイト負極の放電時 (Li 脱離過程) の放射光回折結果を、図 12 に示す。LiC<sub>12</sub> ( $2\theta$ : 8.1° 付近) の挙動に関し、0.2C と 1C の違いが示唆された。

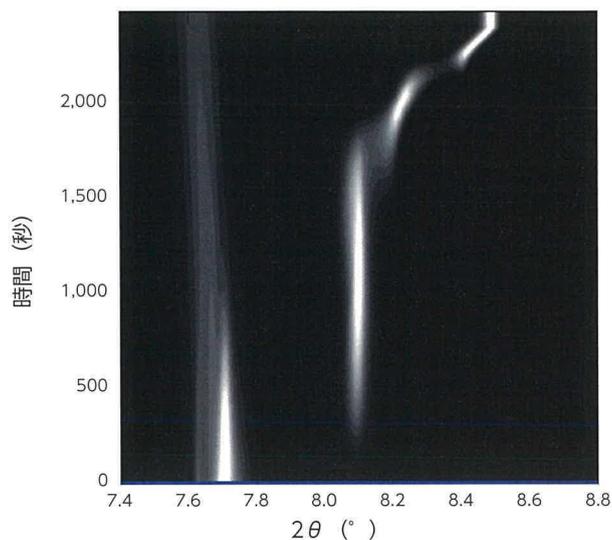


図 12 Li 脱離過程での放射光回折パターン (RT 1C)

放射光回折パターンのピーク分離を行った結果の一例を、図 13 に示す。検出器の露光時間を 0.5s (1C における検出時間) として分析を行い、ショルダー・ピークが含まれた多相で示される放射光回折パターンにおいても、良好にピーク分離できた。

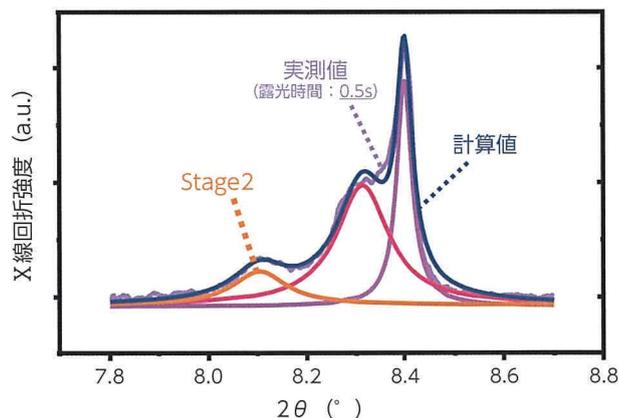


図 13 放射光回折パターンのピーク分離 (一例)

RT の 1C での Li 脱離過程において、これまでと同様に、SOC 5% 毎の放射光回折パターンのピーク分離を行い、ピーク面積率を用いて相の共存状態を調べた結果を、図 14 に示す。0.2C においては、ほぼ単一相でステージ構造が移行するのに対して、1C においては多相でのステージ構造移行が生じることが分かった。

上記の結果より、充放電レートや温度の違いによる相転移状態について、本装置構成にて *operando* 構造解析を行えることが確認できた。

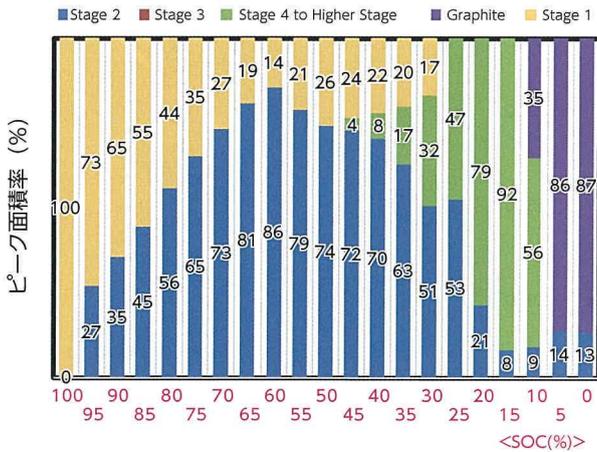


図 14 Li 脱離過程での相共存状態 (RT 1C)

以上から、低温および高レートでは、放電時 (Li 脱離過程) において多相でのステージ構造移行が生じ、この現象が低温および高レートでの電池性能に影響を及ぼすことが推定できた。

### 3.3 カーボン構造の定量化と電池性能との関係 (X 線回折による結晶子サイズ分布の解析)

FP 法を用いて、カーボンの結晶子サイズ (およびその分布) の解析を行った。XRD パターンから、FP 法を用いて結晶子サイズ分布の解析を行った結果の一例を、図 15 に示す。実測値と計算値との差異 (残差) が少なく、良好な計算結果を得た。この計算時における結晶子サイズ分布の解析結果を、図 16 に示す。グラファイトの各々の面について、結晶子サイズ分布を良好に解析できた。

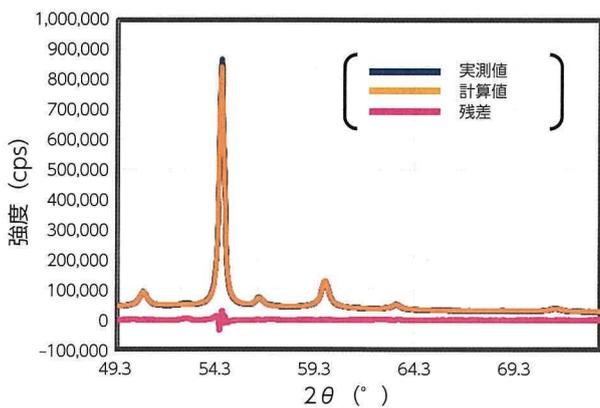


図 15 カーボンの X 線回折パターン

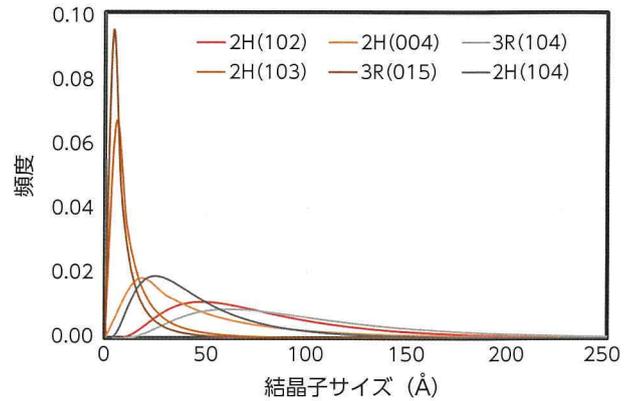


図 16 グラファイトの結晶子サイズ分布

さらに、グラファイトの (102) の結晶子サイズ分布と、電池の低温特性との関係を調べた結果を、図 17 に示す。0°C 0.5C 充電後の 0°C 0.5C のフルセルでの放電容量 (正極活物質重量に対する比容量) を、低温特性として示した。グラファイトの (102) の結晶子サイズ (およびその分布) が小さくなるほど、低温特性が向上することが示唆された。また、グラファイトの (102) の結晶子サイズ分布と、電池の高レート充放電特性との関係についても、同様の結果が得られた。グラファイトの (102) の結晶子サイズ分布は、Li 拡散経路を考慮する Li 拡散性を表していると考えられる。

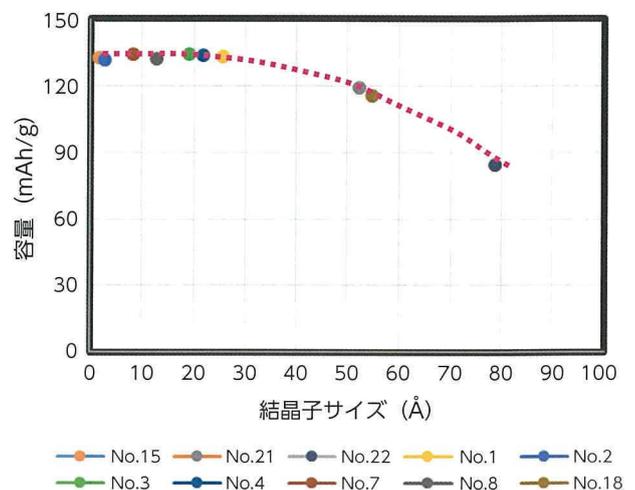


図 17 結晶子サイズ (分布) と電池低温性能の関係

上記の結果より、カーボン (グラファイト) の結晶子サイズ (およびその分布) を解析することで、電池の低温特性や、高レート充放電特性を類推できる可能性があると考えられる。

### 3.4 カーボン構造（結晶性）の違いによる充放電時の相転移への影響の解析

結晶性の高い試料 A と結晶性の低い試料 B を用いて、充放電時の相転移の差異を調べた。充放電曲線から求めた Li 脱離過程での  $dQ/dV$  曲線を、**図 18** に示す。Stage 2 以降において、結晶性（結晶子サイズ）の異なる試料間にて、相転移に違いがあることが示唆された。

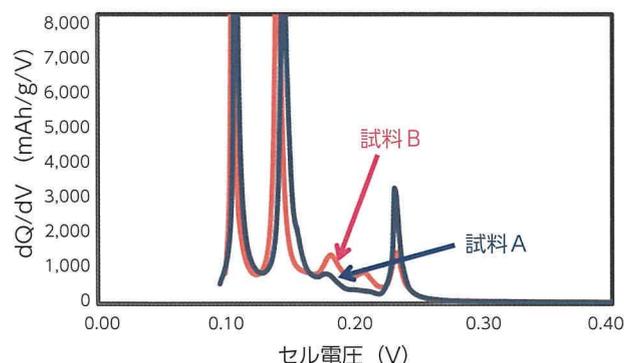


図 18 Li 脱離過程における  $dQ/dV$  曲線

さらに、結晶性の高い試料 A と結晶性の低い試料 B を用いて、放射光回折により相転移状態を解析した結果を、**図 19**、**図 20** に示す。ここでは、Stage 3 へ移行する過程を詳細に解析した。Stage 3 へ移行する際の構造が、結晶性（結晶子サイズ）の違いにより異なることが分かった。**図 19** に示されるように、結晶性の高い試料 A はショルダー・ピークが見られ、多相にて Stage 3 へ移行するのに対して、結晶性の低い試料 B は Stage 3 への移行過程においてショルダー・ピークが確認できず、ほぼ単一相にて相転移が生じることが分かった。

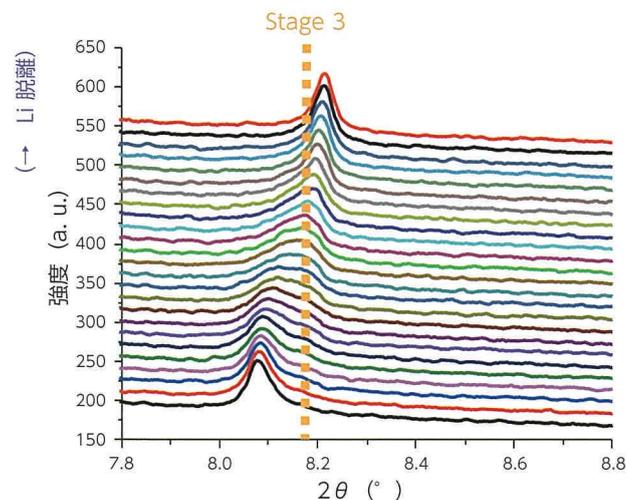


図 19 Stage 3 移行過程における X 線回折パターン（試料 A、結晶子サイズ：大）

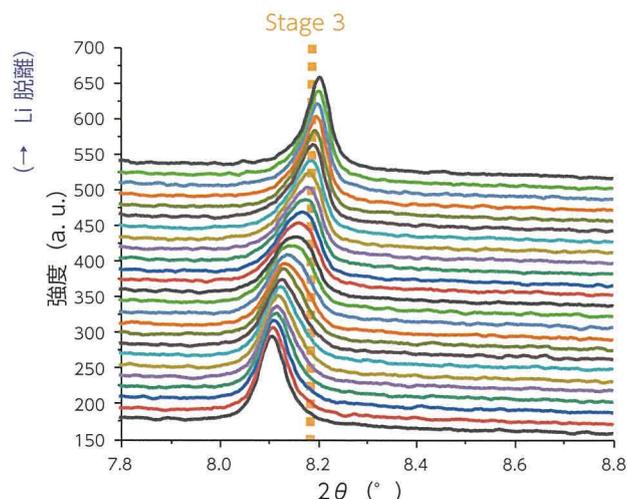


図 20 Stage 3 移行過程における X 線回折パターン（試料 B、結晶子サイズ：小）

以上の結果から、カーボン（グラファイト）の結晶性を低くする（結晶子サイズを小さくする）ことで、エッジ面の面積や格子欠陥の増大により、層間移動等が容易となり、Li 拡散性が向上し、単一相での移行が容易となると推定する。

## 4 結論

(1) 放射光回折および中性子回折による、蓄電池における  $dQ/dV$  解析も含めた低温での *operando* 構造解析（ $-10^{\circ}\text{C}$  から  $50^{\circ}\text{C}$  まで制御可）を可能にした。

(2) 低温は室温に比べ、高レートは低レートに比べ、多相での移行が生じやすいことが分かった。

(3) カーボン（グラファイト）の結晶性が、低温特性や高レート放電特性に影響することを明らかにした。

(4) カーボン（グラファイト）の結晶性が異なると、充放電時の相転移が異なり、この現象が、低温や高率充放電特性に影響を及ぼすと考えられる電池反応メカニズムを明らかにし、新規材料の開発指針を取得した。

今後は、得られた開発指針を基に次期蓄電池材料の開発を目指す。

最後に、本研究は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の「革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発（RISING2）」において得られた成果であり、関係各位の皆様に深く感謝する。

## ■参考文献

- (1) 高木繁治ほか：電池性能に影響を与えるカーボン物性の明確化と in-situ 結晶構造解析による性能向上メカニズム推定. 第 58 回電池討論会講演要旨集. 2017, 1B02
- (2) 高木繁治ほか：放射光回折によるグラファイト負極のオペランド構造解析. 第 59 回電池討論会講演要旨集. 2018, 2E14
- (3) M. Yonemura et al. : Development of SPICA, New Dedicated Neutron Powder Diffractometer for Battery Studies. J. Phys. Conf. Ser. Vol. 502, 2014
- (4) 高木繁治ほか：中性子回折によるグラファイト負極のオペランド構造解析. 2018 年電気化学秋季大会講演要旨集. 2018, 1E04
- (5) T.Ida et al. : Diffraction Peak Profiles from Spherical Crystallites with Lognormal Size Distribution. J. Appl. Cryst. Vol. 36, 2003, pp. 1107 - 1115
- (6) 高木繁治ほか：カーボンの結晶子サイズ分布の解析と電池低温性能への影響. 第 45 回炭素材料学会講演要旨集. 2018, 1A06

## ■著者



高木 繁治

# 硫化物全固体電池における $\text{LiFePO}_4$ 正極の自己形成界面

Self-Forming Interface of  $\text{LiFePO}_4$  Cathode in Sulfide All-Solid-State Battery

大崎 真由子 <sup>*1</sup> Mayuko Osaki	今野 学 <sup>*2</sup> Manabu Imano	古賀 英行 <sup>*2</sup> Hideyuki Koga
小谷 幸成 <sup>*1</sup> Yukinari Kotani	中西 真二 <sup>*1</sup> Shinji Nakanishi	射場 英紀 <sup>*1</sup> Hideki Iba

## 要旨

全固体電池は、従来のリチウムイオン電池では超えられなかった、高いエネルギー密度を有する次世代蓄電池として期待されている。高エネルギー密度化するためには、正極の材料設計が重要であるが、硫化物全固体電池においては、正極活物質と固体電解質の界面で副反応を起こし、抵抗層を形成し易く、一般的には酸化物等のバッファ層をコートした活物質材料が用いられてきた。本研究では、従来のリチウムイオン電池で既に実用化されているリン酸鉄リチウム ( $\text{LiFePO}_4$ ) を全固体電池に適応した結果、 $\text{LiFePO}_4$  活物質と硫化物電解質の界面に、安定で低抵抗な異相を自己形成される新しい現象を発見した。コート層がなくても、 $\text{LiFePO}_4$  活物質の理論容量を示すことができる全固体電池の実現に成功した。

## Abstract

All-solid-state batteries (ASSBs) are regarded as a promising next-generation storage battery with a high energy density that cannot be surpassed by conventional lithium-ion batteries. Cathode material design is an important factor in achieving a high energy density. Since resistance layers form due to side reactions at the interface between the cathode active material and solid electrolyte in sulfide ASSBs, the active materials adopted in these batteries are generally coated with a buffer layer comprising an oxide or the like. This research applied lithium iron phosphate ( $\text{LiFePO}_4$ ), which is already adopted in conventional lithium-ion batteries, to an ASSB. A new phenomenon was discovered in which a stable and low-resistance phase self-formed at the interface between the  $\text{LiFePO}_4$  active material and sulfide solid electrolyte. As a result, an ASSB that exhibits the theoretical capacity of the  $\text{LiFePO}_4$  active material was successfully achieved without a coating layer.

キーワード 電気自動車, リチウム電池, 全固体電池, リン酸鉄リチウム ( $\text{LiFePO}_4$ ), 硫化物固体電解質, 正極, 固体界面, 異相界面, コートレス, 界面反応, 自己形成, 被膜

## 1 はじめに

### 1.1 背景

近年、自動車産業を取り巻く環境は、IT 企業・家電メーカーの参入や発展途上国の急速な経済成長等から激変し、新しいモビリティ社会の実現が迫られている。自動車の電動化は、もはや不可避の流れになっており、電池開発の競争は年々激化の一途を辿っている。ハイブリッド自動車よりも多くの電池を搭載する電気自動車は、安全かつ、より低価格で高エネルギー密度な電池が求められる。

次世代型蓄電池のひとつである全固体リチウム電池は、高い設計自由度と優れた安全性を有し、従来のリチウムイオン電池に続く高エネルギー密度電池として、実用化の期待が強まっている。なかでも、

硫化物固体電解質を用いた全固体電池は、硫化物固体電解質が電解液並みの高いイオン伝導度と成形のし易さから、注目されている。

### 1.2 硫化物全固体電池の正極の課題

硫化物全固体電池では、遷移金属酸化物の正極活物質が、硫化物固体電解質との界面において遷移金属と硫黄元素の相互拡散を起こし、充放電を繰り返すほど電池特性が悪くなることが知られている<sup>(1)</sup>。そのため、正極活物質表面に  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  や  $\text{LiNbO}_5$  等の酸化物を薄くコートして、相互拡散を抑制するのが一般的である<sup>(1)(2)</sup>。

リン酸鉄リチウム ( $\text{LiFePO}_4$ ) は、 $\text{PO}_4$  四面体のポリアニオンを有することから、結晶構造の安定性が高く、高エネルギー密度で、かつ耐久性・安全性に優れるため、 $\text{Li}$  イオン液系電池において実用化されている正極活物質のひとつである<sup>(3)</sup>。しかし、

\*1 先進技術開発カンパニー 先端材料技術部

\*2 パワートレーンカンパニー 電池材料技術・研究部

LiFePO<sub>4</sub> の全固体電池への適用例は極めて少なく<sup>(4)</sup>, LiFePO<sub>4</sub> 正極の理論容量を動かすことでさえ実現できていなかった。LiFePO<sub>4</sub> の電子伝導性は、一般的な遷移金属酸化物の活物質よりも低いゆえに、微小な粒子にカーボンで表面被覆して使用することが望ましく、全固体電池へ適応するには、ナノレベルで均一に酸化物をコートする方法や、電解質との複合化が課題であったためである。

LiFePO<sub>4</sub> 微粒子に酸化物をナノレベルで均一にコートすることは難しいため、本研究では、電気化学的に界面構造を制御して、低抵抗な界面を生成させることを試みた。さらに、界面の状態をいくつかの分析やモデル電極を用いて詳細に解析し、そのメカニズム解明にアプローチした。

## 2 実験方法

### 2.1 LiFePO<sub>4</sub> 粉末の合成

まず、サブ μm の LiFePO<sub>4</sub> 粒子を一般的な水熱法で合成した<sup>(5)</sup>。LiCl, H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, FeSO<sub>4</sub> · H<sub>2</sub>O の前駆体と Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> の還元剤を水に溶解させ、水熱容器に設置、N<sub>2</sub> ガスを封入した密封状態を保ちながら、200℃で24時間加熱し、反応させた。得られた LiFePO<sub>4</sub> 沈殿物は、ボールミルで再び水とポリエチレングリコールの混合溶液に分散させ、180℃の雰囲気下にスプレードライすることで、カーボンの前駆体に覆われた造粒体となった。その後、750℃で1時間焼成し、数 nm の薄いカーボンに被覆された約 10 μm の二次粒子を得た。

この状態で全固体電池に適用すると、固体電解質との接触界面が十分に確保できないため、ジェットミルで二次粒子を平均 0.9 μm の粒子径になるまで解砕した。これにより、固体電解質と一次粒子レベルで混合し易くなり、かつカーボンは表面の一部のみ被覆された状態となった。

### 2.2 電池セルの作製と電気化学測定

正極に用いる硫化物固体電解質は、LiFePO<sub>4</sub> 粒子サイズに合わせて微粒化した Li<sub>2</sub>S-P<sub>2</sub>S<sub>5</sub>-LiI 系非晶質固体電解質<sup>(6)</sup> ( $\sigma_{ion} = 3.0 \text{ mS/cm}$ ) を用いた。LiFePO<sub>4</sub> と、Li<sub>2</sub>S-P<sub>2</sub>S<sub>5</sub>-LiI 系固体電解質、導電助剤として、カーボンファイバー状の VGCF (カーボンナノファイバー) を体積比 10 : 10 : 1 で混合し、正極合剤とした。対極にはチタン酸リチウム (Li<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub>) を用い<sup>(7)</sup>, 同じ固体電解質、VGCF を 30 : 20 : 1 の体積比で混合し、調製し

た。Li<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub> が、安定に 1.5 V vs. Li/Li<sup>+</sup> で動作する範囲を利用するため、正負極モル比を 2.4 とした。正極合剤層と、Li<sub>2</sub>S-P<sub>2</sub>S<sub>5</sub>-LiI 系固体電解質のセパレータ層、対極層の三層構造を有する圧粉体のペレットを、400 MPa のプレスで作製した。

この電池を、C/10 (電流密度 0.40 mAcm<sup>-2</sup>)、測定温度 60℃ の条件で定電流充放電測定を行った。充電のカットオフ電圧は 2.5 V (4.1 V vs. Li/Li<sup>+</sup>) で固定、放電では 0.7 V, 0.5 V, 0 V の 3 種類のカットオフ電圧で設定し、各々の電池を評価した。

## 3 結果と考察

### 3.1 電気化学特性

LiFePO<sub>4</sub> / Li<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 硫化物固体電池に、放電カットオフ電圧の異なる充放電サイクルを行った比容量の変化を図 1 に示す。LiFePO<sub>4</sub> は酸化物コートがされていないにも関わらず、カットオフ電圧を 0 V (1.6 V vs. Li/Li<sup>+</sup>) まで下げて放電したものは、数サイクルの充放電で放電容量が上昇し、LiFePO<sub>4</sub> の理論値 (約 170 mAh/g) まで到達する現象が観察された。一方、0.7 V (2.3 V vs. Li/Li<sup>+</sup>) でカットオフした場合は、充放電サイクルで容量が下がる一方であり、0.5 V (2.1 V vs. Li/Li<sup>+</sup>) では一度大きく下がった後、少しずつ増加していく傾向であった。

放電電圧のカットオフが 0 V の充放電曲線を図 2 に示す。最初の 1, 2 サイクルでは分極が大きく、特に、放電では LiFePO<sub>4</sub> の理論電位 (3.4 V vs. Li/Li<sup>+</sup>) と大きく異なる 2.6 V vs. Li/Li<sup>+</sup> 付近に放電プラトーが出現した。その後、3, 4 サイクルと充放電を重ねると、放電電圧と容量が同時に上昇し、分極は小さくなった。

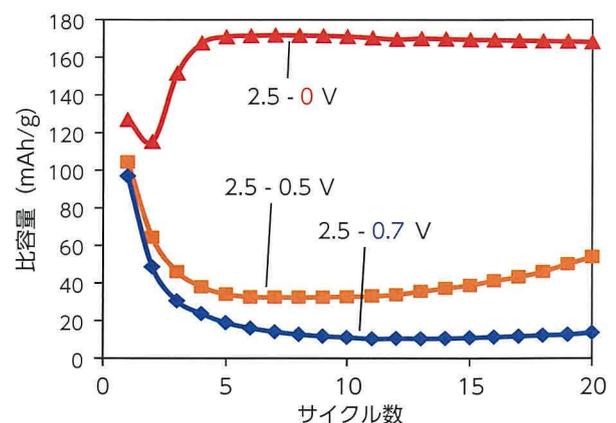


図 1 LiFePO<sub>4</sub> / Li<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 電池の充放電サイクル特性

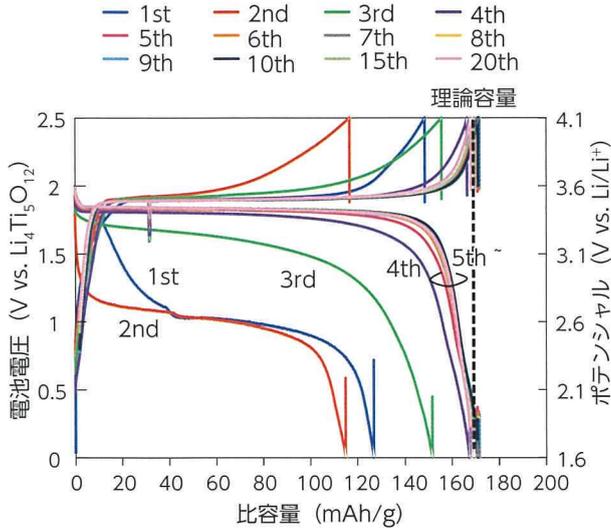


図2 LiFePO<sub>4</sub> / Li<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 電池の充放電曲線

次に、最初の数サイクルの充放電で分極が大きく変化していることから、電気抵抗を調べることにした。セパレータ層にLiAl参照極を設置し、放電カットオフ0 Vの充放電サイクル過程において、正極とLiAl参照極間の交流インピーダンスを測定した結果を、図3に示す。正極活物質/電解質界面の電荷移動反応による抵抗・キャパシタンスが、最初の2、3サイクルで増大し、その後、4サイクルから100サイクルまで抵抗が下がり続けていた。この挙動は、過去の文献では見つけられない新しい現象であった。

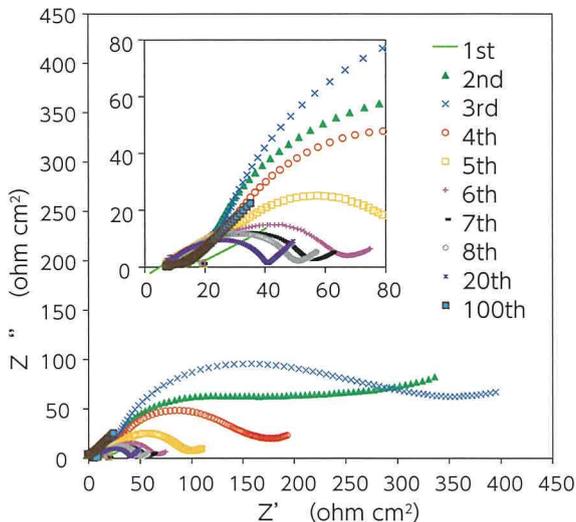


図3 LiFePO<sub>4</sub> 正極と参照極間のナイキストプロット (SOC40, 1 M - 10 mHz)

### 3.2 正極活物質/固体電解質界面の状態解析

放電カットオフ0 Vで充放電した正極活物質/固体電解質の界面抵抗が、サイクルで大きく変

化する化学現象を調べるため、正極合剤の断面をSTEM-EDS (JEOL JEM-ARM200F, 加速電圧200 kV)で観察ならびに元素分析を行った。放電カットオフ0 Vで、2サイクル充放電した正極の分析結果を、図4に示す。左上のHAADF像では、LiFePO<sub>4</sub>粒子と硫化物固体電解質の界面で、LiFePO<sub>4</sub>粒子(a)の外側に、重元素の存在を意味する高輝度な部分(b)が存在していた。その内側には、逆に比較的低輝度な層も観察された。高輝度部分の元素分析からは、FeとSが強く検出され、LiFePO<sub>4</sub>粒子からFeが固体電解質中に拡散していることが示唆された。この高輝度部分の電子線回折パターンを取得すると、実空間で2.67 Å(赤)、2.16 Å(青)、1.77 Å(緑)に相当する回折点が現れ、FeS(六方晶)やFeS<sub>2</sub>(立方晶)の回折面に対応した(図4左下)。これにより、充放電の初期サイクルで、界面に硫化鉄が形成されていることが解った。これは、界面近傍でLiFePO<sub>4</sub>と固体電解質が化学反応していることを意味する。硫化鉄のイオン伝導性( $\sigma_{ion} < 10^{-7}$  mS/cm)は低いことから、この反応生成物の硫化鉄が正極活物質/電解質界面の抵抗に影響したと考えられる。

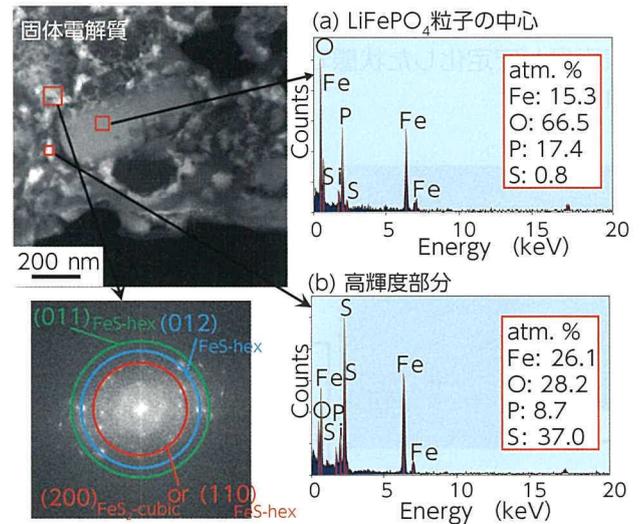


図4 充放電2サイクル後のLiFePO<sub>4</sub>正極断面と元素分析 (SiはFIBグリッド由来)

同様に、充放電サイクルを20回行った後の正極断面HAADF-STEM像を、図5に示す。図4の2サイクル後に観察された高輝度部分(硫化鉄)は、ほぼ消失していた。これにより、4サイクル以降に正極活物質/電解質界面の抵抗が低下したのは、硫化鉄が放電電圧を0 Vまで引っ張ることで何らかの反応が起き、変化した可能性がある。

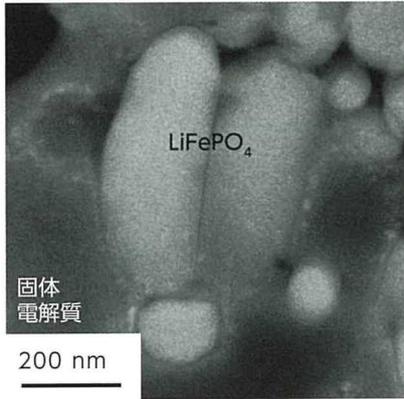


図5 充放電 20 サイクル後の LiFePO<sub>4</sub> 正極断面

次に、図5の20サイクル後と充放電前について、LiFePO<sub>4</sub> / 硫化物固体電解質界面の構造を詳細に調べた。各々の界面を高倍率で観察したBF-STEM像、EDS 元素分析結果を、図6に示す。充放電前の初期状態と比較して、20サイクル後のLiFePO<sub>4</sub> 粒子と固体電解質の界面に、厚さ数~10 nmの異相が形成されていた。この異相は主に非晶質であり、EDSによる局所元素分析から、LiFePO<sub>4</sub> 粒子内部よりもFe濃度が低く、PとO、Sを含有する組成であった。初期サイクルでLiFePO<sub>4</sub> 粒子表面からFeが固体電解質中へと拡散した際に、Feが抜けた表面層が安定化した状態が残った相であると考えられる。

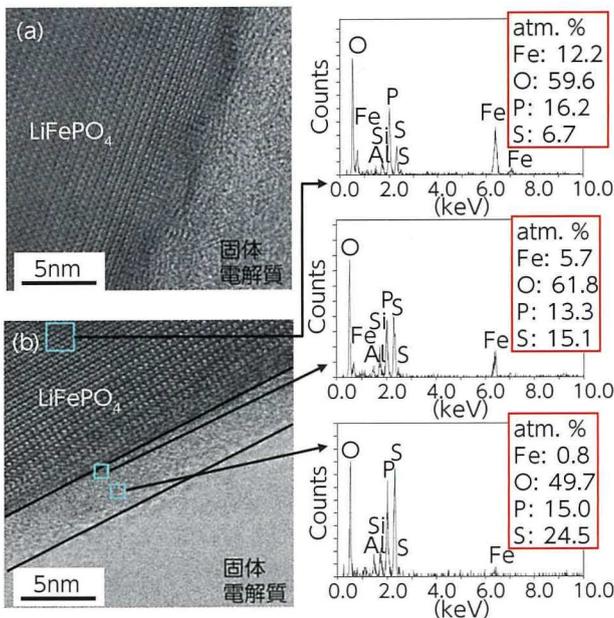


図6 LiFePO<sub>4</sub> / 硫化物固体電解質界面  
(a) 充放電前 (b) 20 サイクル後  
(Al はサンプルホルダー由来)

### 3.3 薄膜によるモデル界面の解析

放電カットオフ0 Vで硫化鉄が消失するメカニズム、ならびに形成された非晶質の界面異相を化学的に同定するため、LiFePO<sub>4</sub> 薄膜を使った硫化物固体電池を作製し、検証することにした。LiFePO<sub>4</sub> 薄膜は、Pt箔上にスパッタ堆積法で作製した500 nm厚さのものを600°C還元焼成し、X線回析(XRD)で結晶構造を確認した後、使用した。LiFePO<sub>4</sub> 薄膜を正極とし、セパレータ層にLi<sub>2</sub>S-P<sub>2</sub>S<sub>5</sub>-LiI系非晶質固体電解質、対極にはLi-Inを用いた。

まず、LiFePO<sub>4</sub> 薄膜と対極InLiを用いた電池で、サイクリックボルタメントリを測定した(図7)。定電流測定と同様、最初のサイクルの還元側掃引で、ポテンシャル2.4 V vs. Li/Li<sup>+</sup>付近にピークが出現し、その後のサイクルで電位が上昇した(図7①)。このピークは、図2の定電流測定で1, 2サイクル目に出現した、2.6 vs. Li/Li<sup>+</sup>あたりの放電プラトーに対応すると考えられる。また、このピークとは別に、1.85 V vs. Li/Li<sup>+</sup>付近に小さなピークが出現し、サイクルを重ねると、ピーク位置は殆ど変化しないが、徐々に小さくなった(図7②)。図1に示した充放電サイクル特性では、0.5 V (2.1 V vs. Li/Li<sup>+</sup>)以下のカットオフ電圧の場合にサイクルによる容量増加が起きていることから、この1.85 V vs. Li/Li<sup>+</sup>付近のピークに由来する還元反応が、抵抗層である硫化鉄を分解したと考えられる。

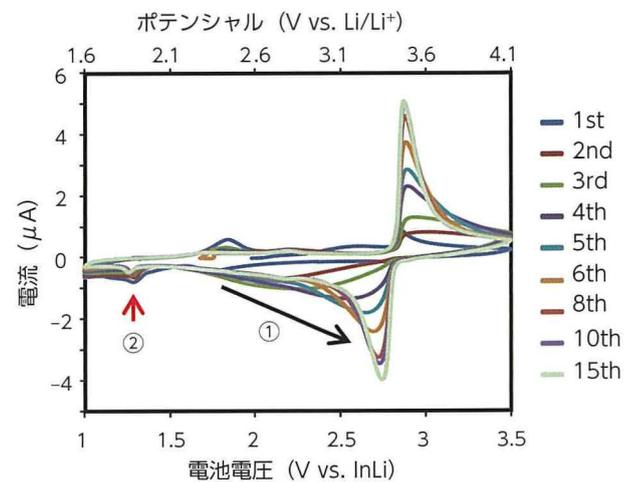
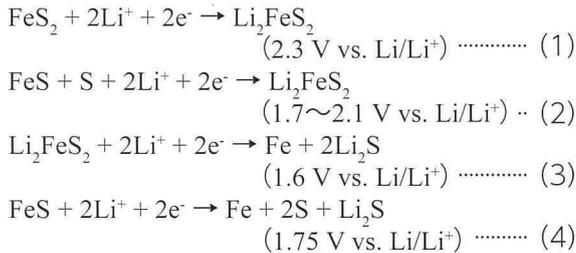


図7 LiFePO<sub>4</sub> 薄膜 / LiIn 電池のサイクリックボルタモグラム

硫化鉄は電極材料として使用され、Liイオンと反応することが知られている。過去の文献によると、式(1)(2)で示されるLiイオン挿入反応に加え、より低い電位では、式(3)(4)に示すよ

うなコンバージョン反応が起きると報告されている<sup>(8)(9)</sup>。Liイオンが挿入される反応は可逆であるが、コンバージョン反応は硫化鉄が分解するため、不可逆である。このことから、1.85 V vs. Li/Li<sup>+</sup> 付近のピークはコンバージョンに近い反応が起きて、抵抗層となっていた硫化鉄が分解したと推測される。



次に、LiFePO<sub>4</sub> 薄膜/硫化物固体電解質界面の X 線吸収分光測定 (XAS) を行った。圧粉電池と同様、0.1C 相当の電流密度 0.8 μAcm<sup>-2</sup> で定電流の充放電 (1.6 - 4.1 V vs. Li/Li<sup>+</sup>) を行った後、正極薄膜をセパレータから剥がし、正極薄膜/固体電解質の界面異相を分析した。検出器には、表面敏感な TEY (Total electron yield) を使用した。

正極側界面におけるリン (P) の L 吸収端と硫黄 (S) の K 吸収端の X 線吸収微細構造 (XANES) スペクトルを、**図 8** に示す。P の L 吸収端では、40cyc 後に a/c ピーク比が 0.55 から 0.95 に増大しており、これは、結晶構造中で、リン酸の P を中心とした PO<sub>4</sub> 四面体が隣の PO<sub>4</sub> 四面体と O を介した、架橋構造が増えること、つまり、ピロリン酸やメタリン酸等の酸素量が少ない組成に変化したことを意味している<sup>(10)</sup>。一方、S の K 吸収端からは、40 サイクル後に SO<sub>3</sub><sup>-</sup> イオンに由来する 2478 eV と、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> に対応する 2482 eV ピークが強く現れた。これにより、界面異相の組成は、xLi<sub>2</sub>O-(100-x)P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Li<sub>2</sub>SO<sub>y</sub> (x ≤ 67, y = 3 ~ 4) の化学式で表される非晶質であることが示唆された。この異相には、Fe があまり含まれていないことに加えて、硫黄が高酸化状態で硫酸として界面に存在していることから安定で、LiFePO<sub>4</sub> と硫化物電解質の化学反応を抑制する役割を担っているものと考えられる。

また、Li<sub>2</sub>O-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 系の非晶質は Li イオン伝導性を有し、さらに、Li<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> や Li<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を混合すると、イオン伝導度が向上することが報告されている<sup>(11)</sup>。したがって、サイクルを追うごとに抵抗が低減するのは、硫化鉄が消失することに加え、残された界面異相の Li イオン伝導性が向上したことも由来していると考えられる。

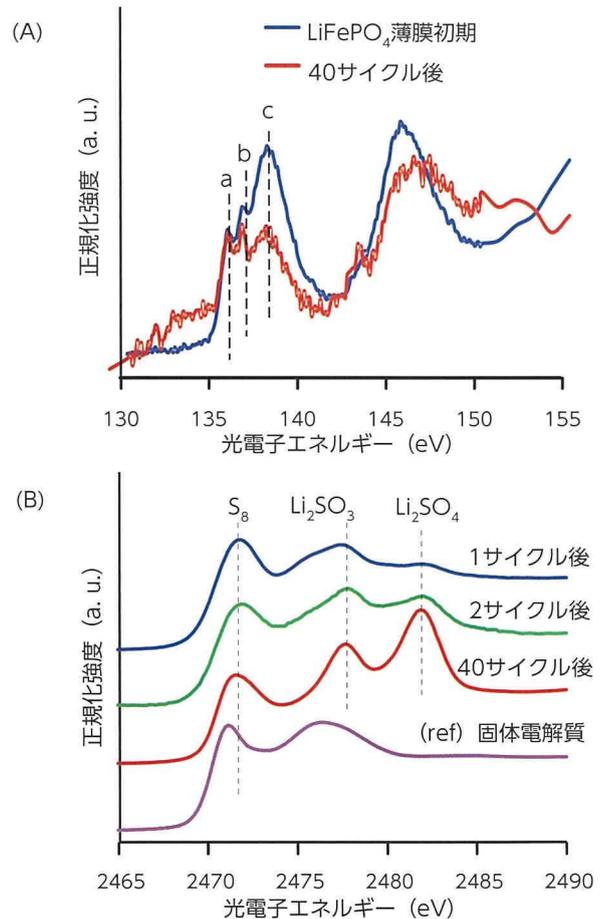
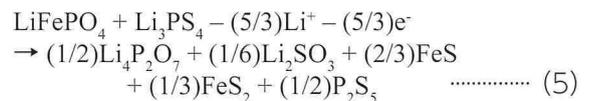


図 8 LiFePO<sub>4</sub> 薄膜界面の XANES スペクトル (A) P の L 吸収端 (B) S の K 吸収端

### 3.4 LiFePO<sub>4</sub> 正極界面の反応機構まとめ

以上の結果をまとめると、**図 9** の模式図に示すような現象が起きていると考えられる。最初の数サイクルでは、充電中に、LiFePO<sub>4</sub> 粒子表面から Fe イオンが固体電解質側に引き寄せられ、LiFePO<sub>4</sub> /硫化物固体電解質界面で式 (5) に示すような化学反応を起こして、硫化鉄の抵抗層を形成する。



放電では、この硫化鉄自体が LiFePO<sub>4</sub> よりも低いポテンシャルで Li イオンと反応するので、固体電解質中を伝導してきた Li イオンは、硫化鉄の放電電位で挿入される。さらに電圧を下げると、1.85 V vs. Li/Li<sup>+</sup> 付近で、抵抗層となる硫化鉄が還元分解される。サイクルを繰り返していくと、分解した Fe イオンは固体電解質中に拡散し、これにともなって、電圧は LiFePO<sub>4</sub> の電位まで上昇する。

界面には、Fe が抜けた xLi<sub>2</sub>O-(100-x)P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Li<sub>2</sub>SO<sub>y</sub> (x ≤ 67, y = 3 ~ 4) で表される数 ~ 10 nm の異相が LiFePO<sub>4</sub> 粒子の表面に形成される。

この界面異相は安定で、Li イオン伝導性があるため、これ以上の  $\text{LiFePO}_4$  と硫化物固体電解質の化学反応を抑制する。この反応は、層状酸化物の正極等では起きないものであり、 $\text{LiFePO}_4$  をはじめとするポリアニオン特有であると考えられる。

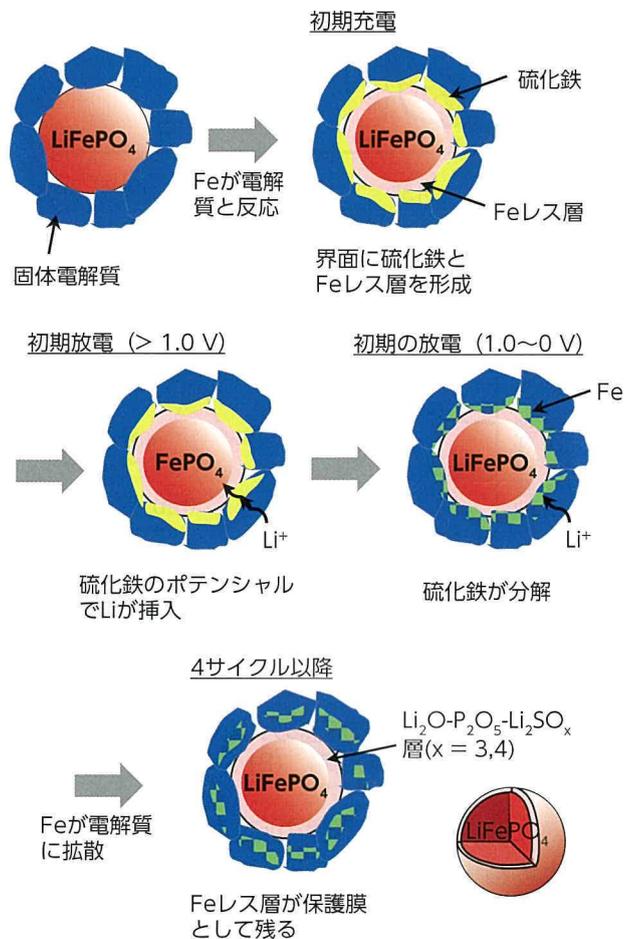


図9  $\text{LiFePO}_4$  正極界面反応の模式図

## 4 むすび

$\text{LiFePO}_4$  正極活物質を硫化物固体電池に適用検討し、充放電制御で低抵抗な  $\text{LiFePO}_4$  / 硫化物電解質界面が形成される現象を発見した。その界面を詳細に調べると、Li イオン伝導を有する安定な異相を自己形成しており、微小粒子であっても酸化物コートレスで低抵抗な正極界面を作ることができることを示した。さらに、この自己形成機能を利用すれば、充放電の活物質の膨張収縮によってコート層が割れる劣化が生じてても、異相を自己再形成するため、耐久性を保持できる効果も期待される。

本研究は、オリビン正極を用いた硫化物全固体電池として、はじめて理論容量で良好な電池特性を示す実施例となった。 $\text{LiFePO}_4$  の正極は、耐久性・安全の観点からも信頼性が高く、全固体電池の実用

化が加速するものと期待している。

### 参考文献

- (1) A. Sakuda et al., Chemistry of Materials. Vol. 22, 2010, pp. 949 - 956
- (2) N. Ohta et al., Electrochemistry Communications. Vol. 9, 2007, pp. 1486 - 1490
- (3) SY Chung et al., Nature materials. Vol. 1, 2002, pp. 123 - 128
- (4) A. Sakuda et al., Chemistry Letters. Vol. 41, 2012, pp. 260 - 261
- (5) Y. Maeyoshi et al., J. Power Sources. Vol. 337, 2017, pp. 92 - 99
- (6) S. Ujiie et al., J. Solid State Electrochemistry. Vol. 17, 2013, pp. 675 - 680
- (7) H. Kitaura, et al., J. Material Research. Vol. 25, No. 8, 2010, pp. 1548 - 1553
- (8) K. Takada et al., J. Electrochemical Society. Vol. 148, No. 10, 2001, pp. A1085 - A1090
- (9) T. A. Yersak et al., J. Electrochemical Society. Vol. 160, No. 8, 2013, A1009 - A1015
- (10) Z. Yin et al., Wear. Vol. 202, 1997, pp. 172 - 191
- (11) M. Ganguli et al., Solid State Ionics. Vol. 122, 1999, pp. 23 - 33

### 著者



大崎 真由子



今野 学



古賀 英行



小谷 幸成



中西 真二



射場 英紀

# リチウムイオン電池の異物内部短絡試験手法開発

Development of Test Methodology for Internal Short-Circuits Caused by Foreign Matter in Lithium-Ion Batteries

濱崎 真一\*1      石原 裕也\*1      宮澤 健作\*1      金子 哲也\*1  
 Shinichi Hamasaki      Yuya Ishihara      Kensaku Miyazawa      Tetsuya Kaneko

## 要旨

電動車両用リチウムイオン電池の、内部短絡を想定した際の安全性試験方法について紹介する。

リチウムイオン電池は、電池内部で万が一異物による短絡が発生した際の状況を適切に試験できるかが非常に重要である。これまでの内部短絡試験方法は、電池を解体した上で、微小金属片を電池内部へ組み込み、それを加圧して内部短絡させていたため、高度な専門知識と技術が無ければ実施できない試験であった。そこで、電池の外部から機械的な方法で電池内部に微小な短絡を生じさせ、電池の解体などから解放される簡便な手法を見出した。現在、この手法を世界標準に組み込むよう、活動を進めている。

## Abstract

This article describes a safety test methodology that assumes the occurrence of an internal short-circuit in a lithium-ion battery installed in an electrified vehicle. For lithium-ion batteries, the ability to properly test states arising from short-circuits generated by foreign matter inside the battery is extremely important. In previous internal short-circuit test methods, the battery was disassembled, minute metal particles inserted inside the battery, and pressure applied to generate an internal short-circuit. This test could not be carried out without a high level of specialist knowledge and technology. Therefore, a simpler methodology was developed that generates small short circuits inside the battery by an external mechanical means, thereby eliminating the need to disassemble the battery. Efforts are currently under way to incorporate this methodology into global standards.

キーワード 電動車, リチウムイオン電池, 内部短絡試験, IEC

特集

## 1 はじめに

自動車産業は、100年に一度と言われる大変革の時代に直面しており、急ピッチで車両の電動化や運転の自動化が進められている。一方で、環境の観点からも車両の電動化への期待が高まっており、トヨタとしても「トヨタ環境チャレンジ2050」という取り組みの中で、「新車CO<sub>2</sub>ゼロチャレンジ」として、CO<sub>2</sub>排出量の削減を図っている。図1は、車両電動化のマイルストーンを示しており、電動車

両を拡大し、新車から排出される走行時のCO<sub>2</sub>排出量を、2050年時点で、2010年比90%の削減を目指している。

図2は、トヨタのハイブリッド車（以下HV）の販売量と、CO<sub>2</sub>削減量を示している。同クラスのガソリン車と比較した場合、これまでに累計で7,700万トン相当のCO<sub>2</sub>抑制を実現できており、今後も、「新車CO<sub>2</sub>ゼロチャレンジ」で掲げた目標を達成すべく、電動車両の拡大を進めていく計画である<sup>(1)</sup>。

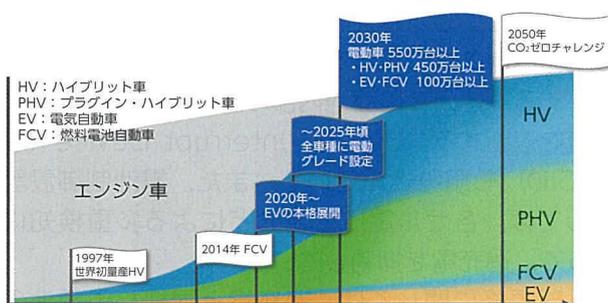


図1 車両電動化のマイルストーン

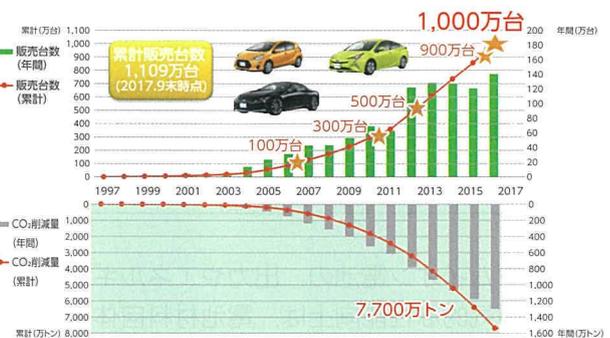


図2 HVの販売量とCO<sub>2</sub>削減量

\*1 パワートレインカンパニー 電池材料技術・研究部

## 2 電動車両用のリチウムイオン電池

トヨタは、1990年代に初代プリウスを製品化して以降、ニッケル水素電池を搭載したHVを主流としてきた。近年は、エネルギー密度の高いリチウムイオン電池を搭載したHVや、プラグイン・ハイブリッド車（以下PHV）も展開している。

リチウムイオン電池を搭載したHVとしては、2011年のプリウスαをはじめ、2015年の4代目プリウスなどを製品化してきている。また、PHVとしては、2012年の初代プリウスPHVおよび、2017年の2代目プリウスPHVがある。表1および、表2に、HV、PHVへ搭載したリチウムイオン電池の諸元を示している。HV用のリチウムイオン電池は、電池の出力密度を向上させており、これによって、車両の燃費向上に貢献している。また、PHV用のリチウムイオン電池は、電池容量を高め、車両のEV走行距離増加に繋げている。

表1 HV用リチウムイオン電池諸元

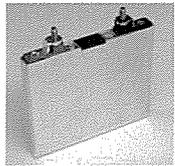
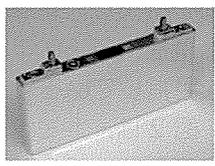
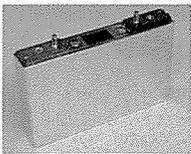
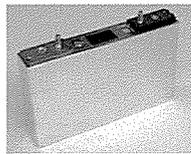
車両	プリウスα	4代目プリウス
容量 (Ah)	5.0	3.6
出力密度 (W/kg)	2,950	3,920
重量 (g)	245	204
寸法 (mm)	111 (W) × 14.1 (T) × 91.8 (h)	137 (W) × 13.3 (T) × 63.3 (h)
電池外観		

表2 PHV用リチウムイオン電池諸元

車両	初代プリウスPHV	2代目プリウスPHV
容量 (Ah)	21.5	25.0
重量 (g)	726	720
寸法 (mm)	148 (W) × 26.5 (T) × 91 (h)	148 (W) × 26.5 (T) × 91 (h)
電池外観		

リチウムイオン電池の、出力やエネルギー密度といった電気的な性能向上は、電池材料自体の改良をはじめ、材料の高充填化の工法開発など、さまざまな改善を積み上げた結果であるが、十分な電気特性

を有するだけでは電池を世の中に出すことはできない。電池は、所定の体積の中にエネルギーを蓄えたものであるが故に、良好な電気特性を有するだけでなく、どこまで電池の安全性や信頼性を確保できるかが、世の中へ製品を提供する際の重要な要素となる。そこで、次章では、リチウムイオン電池の安全設計について述べる。

## 3 リチウムイオン電池の安全設計

一般的に、リチウムイオン電池は、単電池を組み合わせた電池パックとして用いられている。電池パックには、電池の電圧や温度などの制御ユニットが組み込まれている。よって、電池の安全に関しては、単電池の設計、電池制御設計、パック設計の3段階構成で設計できる。この構成に基づいたリチウムイオン電池の安全設計を、表3に示す。

表3 リチウムイオン電池の安全設計

	単電池設計	電池制御設計	パック設計
過充電	異常発熱時のセパレータシャットダウン	多重検知による保護 -各セル電圧監視 -ブロック電圧監視 -パック電圧監視	-
外部短絡	Current Interrupt Device (CID) による電流遮断	-	ヒューズによる過電流保護
衝突	-	-	強度アップ搭載位置
異物内部短絡	Heat Resistance Layer (HRL) による短絡耐性向上	電池制御設計、パック設計による対応不可	

車両上で起こり得る安全性に関する代表的な項目として、過充電、外部短絡、衝突、異物による内部短絡がある。

まず、過充電に対しては、単電池の設計として、電池内部の温度が上昇した際に、電池の正極と負極を隔離しているポリオレフィン製セパレータが熔融して、電池内部の電流を遮断するシャットダウン機構がある。加えて、電池内部の圧力が上昇した際に電流を遮断する、Current Interrupt Device（以下CID）も組み込んでいる。また、電池制御設計としては、各セル電圧監視などによる多重検知によって、過充電を抑制している。

外部短絡に関しては、過充電と同様な単電池の設計に加え、パック設計として、ヒューズを組み込み、大電流が流れ続けることを防いでいる。

車両の衝突による電池への荷重入力については、パック設計として、電池パックの強度アップや、衝突時に荷重が入りにくい位置へ搭載することによって対策している。

異物による内部短絡に対しては、単電池の設計として、正極と負極の間に Heat Resistance Layer (以下 HRL) という層を設け、電池内部で短絡が起きた際の発熱を抑え、熱暴走のリスクを低減している。また、電池内への異物混入に関しては、電池の製造工程内における異物管理を徹底し、出荷検査の段階で異物が混入した電池を検出できるような仕組みにしている。しかしながら、異物による内部短絡は、これまでに述べた過充電などと異なり、電池制御設計やパック設計で保護ができない。そのため、単電池の設計段階において異物が混入した場合の安全性を適切に見極めることが非常に重要である。次章では、電池内部に異物が入った場合の安全性試験方法について説明する。

#### 4 現状の異物内部短絡試験方法

異物による内部短絡の試験手法としては、国際電気標準会議 (International Electrotechnical Commission: 以下 IEC) で定める IEC62660-3 に、強制異物内部短絡試験 (Forced Internal Short Circuit: 以下 FISC) がある。その手順を以下に示す。まず、電池内部の電極体を電池の外装ケースから取り出し、微小金属片を電極体内へ挿入する。その後、電極体を外装ケースへ戻し、外部から荷重をかけることで強制的に内部短絡をさせ、その際の電池の安全性を確認する (図 3)。

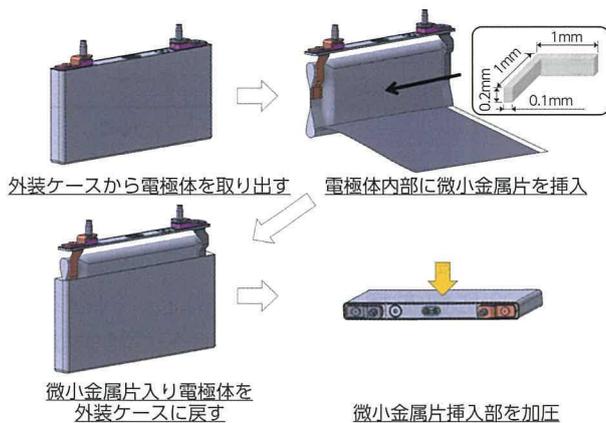


図 3 FISC 試験の概略

FISC 試験は、異物による内部短絡を模擬する手法として非常に有効な試験方法だが、試験を行うには、電池の解体や微小金属片の取り扱いなど、高度な専門知識と技術が無ければ実施できない手法であった。そこで、世界各国からプラントロッド、プラントネイル、セラミックネイル試験 (以下 代替案) などの代替手法が提案されている (図 4)。

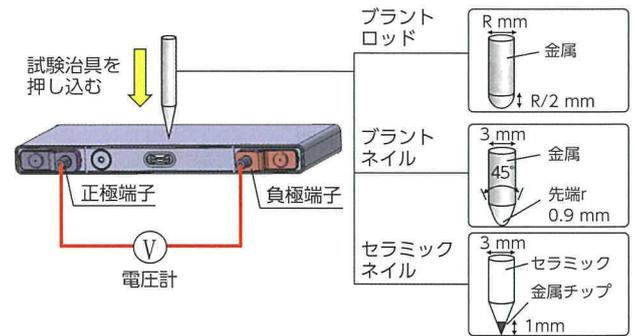


図 4 FISC 試験代替手法一覧

代替案は、電池の外部から試験治具を用いて荷重をかけ、局部的に短絡を生じさせる手法であり、電池を解体する必要がない簡便な手法である。

しかしながら、電池内部に数十層ある正極と負極の 1 層分だけ短絡する FISC 試験に対し、代替案の場合は、複数層が短絡してしまう。つまり、電池内部へ異物が混入した場合を想定し、1 層短絡時の状態を模擬した FISC 試験に対し、代替案はかい離した試験となっていた。さらに、PHV や EV で用いるような高容量の電池においては、短絡層数が増加する傾向が見られた (図 5)。

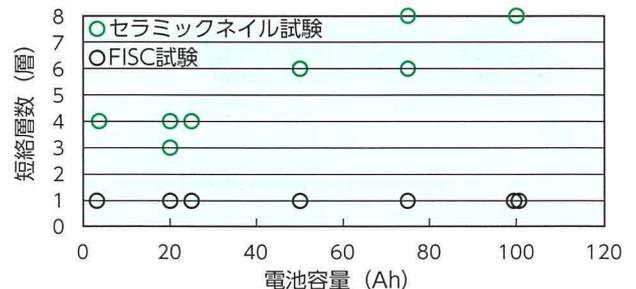


図 5 電池容量と短絡層数

代替案にて複数層短絡してしまう理由は、次のように考えている。代替案の場合、電池の外部から試験治具を押し込み続け、電池電圧が一定の値に低下した時点で試験を終了する。その際、短絡した瞬間から電池電圧の低下が起きるまでに時間差があるため、試験終了条件の電圧を検知した時点では、す

で複数層短絡してしまう。特に、高容量電池の場合、その時間差が大きくなるため、短絡層数が増加してしまうのである (図 6)。

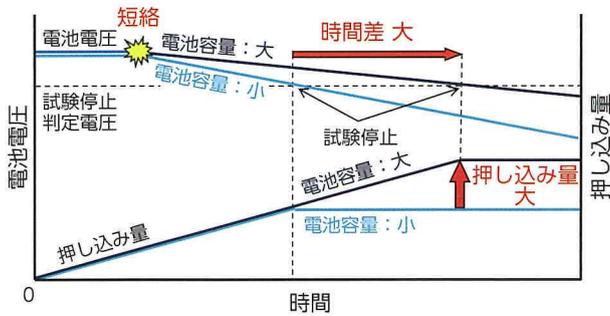


図 6 短絡層数増加要因概略

そこで、検討を重ね、簡便でありながら 1 層短絡を実現できる、新たな試験手法に辿り着くことができた。次章で、新規試験手法の詳細について報告する。

## 5 新規異物内部短絡代替手法 (2)

### 5.1 新規試験手法の原理

新規試験手法の Directly detected Internal Short Circuit (以下 DISC) は、図 7 に示す通り、電池の外部から金属製の釘を押し込む方法だが、釘に電圧測定端子としての機能ももたせることで、簡便且つ 1 層短絡を実現している。

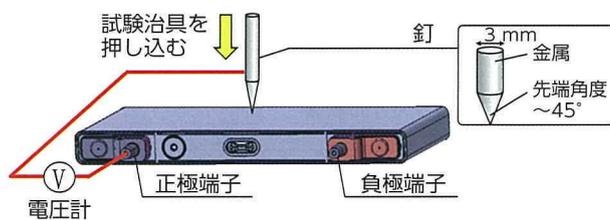


図 7 DISC 試験の概略

まず、DISC 試験の作業性に関して述べると、電池の外部から金属製の釘を押し込むことで内部短絡させているため、代替案同様であるが、電池の解体や微小金属片を設置する作業が不要であり、簡易な試験方法となっている。さらに、セラミックネイルのような、入手が難しく、特殊で、高価な試験治具も不要であるため、代替案と比較しても容易に実施できる手法である。

次に、DISC 試験での短絡層数について解説する。代替案においては、電池全体の平均電圧を試験終了

判定に利用しているため、電池電圧の低下が起きるまでに時間差が発生し、複数層短絡をしていた。しかしながら、DISC 試験においては、釘が電圧測定端子として機能するので、短絡点の電圧変化を直接測定することができ、短絡直後の微小な電圧変化を捉えられる。そのため、1 層短絡で試験を停止することができる。

### 5.2 DISC 試験時の電圧挙動

DISC 試験は非常に簡便な手法であるが、計測を行う正極端子-釘間電圧の挙動が複雑であるため、順を追って詳細に説明する。

#### (1) 試験開始前

電圧計に、正極端子と釘を接続する。釘は電池に接触していないため、正極端子-釘間電圧は、0V を示す (図 8)。

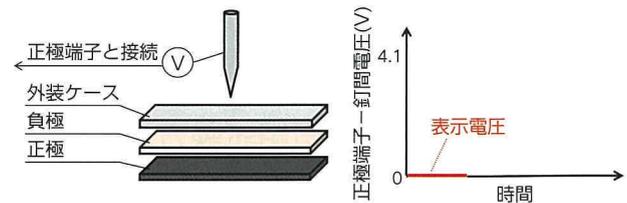


図 8 試験開始前の正極端子-釘間電圧

#### (2) 釘押し込み開始、外装ケースとの接触

釘を押し込んでいくと、最初に外装ケースと接触する。釘が外装ケースに接触しているため、正極端子-釘間電圧は、正極端子と外装ケース間の電圧を示す (図 9)。

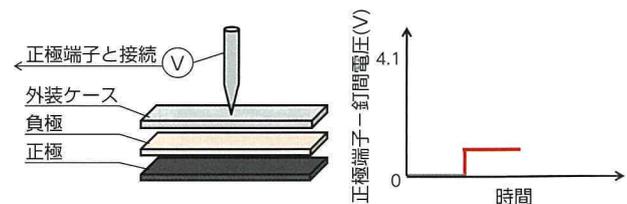


図 9 ケース接触時の正極端子-釘間電圧

#### (3) 負極との接触

さらに釘を押し込んでいくと、釘が電池ケースを貫通し、その先端が負極に接触する。釘が負極に接触しているため、正極端子-釘間電圧は、電池電圧を示す (図 10)。

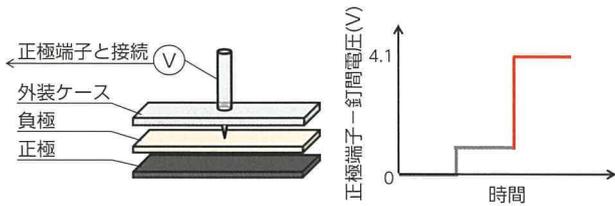


図 10 負極接触時の正極端子-釘間電圧

(4) 正極接触時 (短絡)

釘が負極を貫通した後、その先端部は正極に接触する。正極端子-釘間電圧は、釘が正極に接触した瞬間、正極と負極の短絡によって電圧が降下する。この電圧降下によって、1層短絡した瞬間を検知することができる (図 11)。

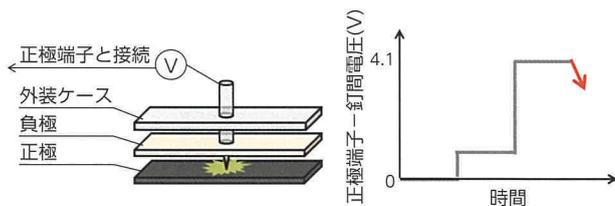


図 11 正極接触時の正極端子-釘間電圧

## 6 DISC 試験結果と考察

### 6.1 実機試験方法

前述の手順に従い、表 4 に示す条件にて実機試験を行った。試験後の電池は解体し、短絡層数の確認を行った。

表 4 DISC 試験時の試験条件

釘仕様	直径	3mm
	先端角度	45°
	材質	SUS440
試験条件	試験温度	室温
	開始電圧	4.1V (満充電状態)
	釘押し込み速度	0.01mm/s
終了条件	正極端子-釘間電圧降下量	0.2V 以上

### 6.2 試験結果

3.6Ah および 25.0Ah の電池と、高容量電池模擬のために、25.0Ah の電池を 4 つ並列接続し、100Ah とした電池を用いた。試験結果を図 12 に示す。

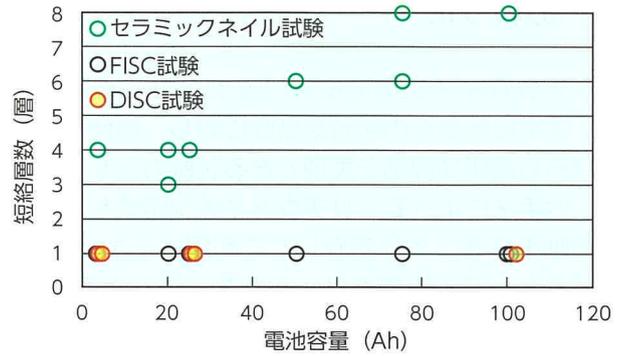


図 12 電池容量と短絡層数

DISC 試験は、どの電池容量においても 1 層短絡となった。このように、DISC 試験は簡便でありながらも、FISC 試験同様に短絡層数を 1 層で止めることができるため、異物による内部短絡の試験手法として有用な方法であると考えている。

## 7 世界標準に向けた活動

ここまで新たな試験方法に関して述べてきたが、最後に、DISC 試験の世界標準化に向けた取り組みについて説明する。

日本では、日本自動車研究所 (Japan Automobile Research Institute : 以下 JARI) を事務局とし、日本国内の関連企業・関連組織が参画する JARI 電池標準化 WG にて、電動車両用リチウムイオン電池の標準に関する審議を行っている。そのなかで、前述の IEC や ISO (International Organization for Standardization) の標準に関して協議し、日本案をまとめ、標準化活動に参加している諸外国と協議し、国際標準に繋げている。特に、電動車両のリチウムイオン電池に関連する IEC62660 については、議長国である日本がリードしながら国際標準化を実現した<sup>(3)</sup>。トヨタも JARI 電池標準化 WG に参加し、IEC 標準に関する審議、提案をしている。

FISC 試験は IEC62660-3 に規定されているものの、試験の技術的な難易度が高いことから、国際標準の協議のなかでも、一部の国から代替手法の必要性が訴えられている。それに対し、これまでに紹介した DISC 試験は、そのニーズに応え得るものであると考えている。そのため、現在国内の JARI 電池標準化 WG、並びに各国メンバーが集まる IEC 国際会議にて、DISC 試験の有用性を訴求しており、この活動を通じ、DISC 試験の国際標準化を目指している。

## 8 おわりに

リチウムイオン電池における安全性の検証として、非常に重要な内部短絡試験に対し、簡便でありながらも適切な評価を実現できる試験方法を見出した。本手法によって、リチウムイオン電池を搭載した電動車両を、より安心してご利用いただければ、技術者として幸いであり、それを実現できるよう、今後も努力していきたい。

最後に、本開発を進めるにあたり、ご支援、ご協力いただいた多くの関係者の皆様に深く感謝申し上げます。

### ■参考文献

- (1) 佐藤広一：自動車の電動化に向けてートヨタの動力用電池の開発と今後の展望ー。自動車技術会 Technical Review. 2018
- (2) Y. Ishihara et al.: A new method for safety test of internal short circuit. AABC. 2018
- (3) 高橋雅子：電動車両用電池・充電に関する国際標準化の進捗。JARI Research Journal. 2014, 2014-12-01

### ■著者



濱崎 真一



石原 裕也



宮澤 健作



金子 哲也

# 新型カムリ HV 用リチウムイオンセルとバッテリーパック開発

Development of Lithium-Ion Cells and Battery Pack for Redesigned Camry HV

副島 崇礼\*<sup>1</sup>      伊藤 秀太\*<sup>2</sup>  
Takanori Soejima      Shuta Ito

## 要旨

2017年発売の新型カムリ HV では、HV-TNGA (TNGA : Toyota New Global Architecture) 頭出しとなる新型プリウスにて採用された HV システム (THS-II : Toyota Hybrid System) の性能を最大限に高めるべく、多くのユニットを新規開発した。高い性能・安全性を確保しながら、小型・軽量化を実現した、新型カムリ HV の駆動用リチウムイオンセルとバッテリーパックの技術について紹介する。

## Abstract

The redesigned Camry HV that was launched in 2017 features a wide range of newly developed components. This development aimed to maximize the performance of the Toyota Hybrid System (THS II) installed in the redesigned Prius, which was the first vehicle based on the Toyota New Global Architecture for hybrid vehicles (HV-TNGA). The lithium-ion cells and battery pack used in the redesigned Camry HV were reduced in size and weight while maintaining high performance and safety. This article describes the technology of these lithium-ion cells and battery pack.

キーワード カムリ HV, リチウムイオンセル, バッテリーパック, バッテリスタック

## 1 はじめに

自動車業界における各国の環境規制は年々厳しくなっており、今まで以上に環境性能にフォーカスをおいた車両を開発し、普及させる必要がある。また一方で、環境性能だけでなく、快適性や走りの楽しさも盛り込んだ車両を開発することも、ハイブリッド車（以下、HV）をこれまで以上に普及させる上では不可欠な要素である。駆動用バッテリーは、これら商品性に直結する、非常に重要なユニットである。今回、2017年発売の新型カムリ HV の、駆動用バッテリーを構成するユニット、および機能について紹介する。

## 2 開発の狙い

カムリ HV では、全高を下げ、低重心化することによる操縦性向上に加え、駆動用バッテリーにもさらなる車両商品性向上への貢献（低燃費・小型化・軽量化・ラゲージ容量拡大など）が求められた。それに応えるべく、2015年発売のプリウスの構成部品を活用しつつも、商品性を大幅に向上させた、カムリ HV の駆動用バッテリーを新規開発した。

## 3 セル設計

### 3.1 セル体格

第1世代のリチウムイオンセルに対し、セル容量をHV用に最適化し、重量を軽く、体積を小さくすることで、駆動用バッテリーパックの小型化・軽量化に貢献した（表1、2）。

表1 第1世代リチウムイオンセル

電圧 (V)	3.6
容量 (Ah)	5.0
重量 (g)	276
寸法 (mm)	幅: 110 奥行: 13.5 高さ: 91.8

表2 第2世代リチウムイオンセル

電圧 (V)	3.7
容量 (Ah)	4.0
重量 (g)	217
寸法 (mm)	幅: 137 奥行: 13.3 高さ: 63.3

\*1 パワートレーンカンパニー 電池材料技術・研究部

\*2 パワートレーンカンパニー EHV 電池設計部

### 3.2 安全性

リチウムイオンセルを適用する上で、安全性確保は必須である。

危険物輸送に関する国連勧告 第6版 (UN38.3), 中国法規 (GB/T31485), IEC62660 に対して、全て要件を満たす結果となっている (表3)。

表3 安全性試験結果

項目	結果
圧壊	満足
落下	満足
釘刺し	満足
外短	満足
過充電	満足
過放電	満足
異物内短	満足
塩水浸漬	満足

また、過充電対策としては、ニッケル水素電池の制御方式に加え、全てのセルの電圧を監視する機能を追加し、各セルに上限電圧の閾値を設け、確実に過充電を防止している。

### 3.3 出力性能

HV では、減速時のエネルギー回生と動力性能を確保するため、高い入出力性能が求められている。特に、燃費向上に重要な入力性能の向上は必須要件である。

第1世代のリチウムイオンセルに対し、活物質粒径を小さくすることで、入出力性能を向上させた (図1, 2)。

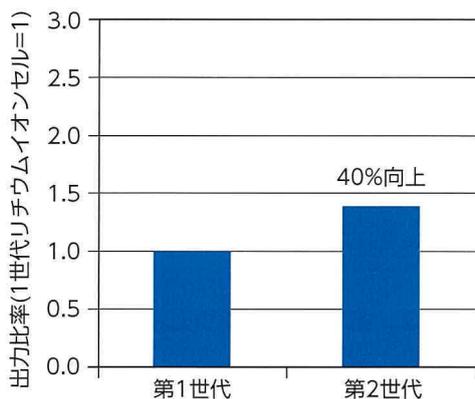


図1 リチウムイオンセルの第1世代と第2世代の出力比率

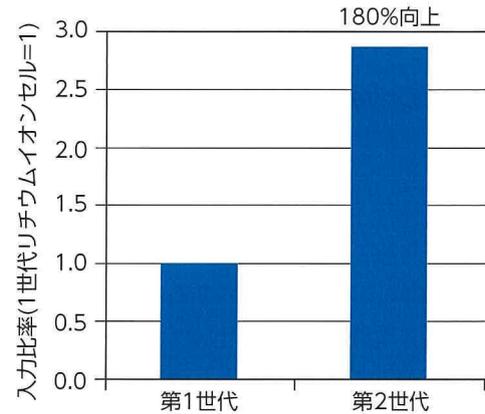


図2 リチウムイオンセルの第1世代と第2世代の入力比率

### 3.4 性能寿命予測

本リチウムイオンセルは、耐久に伴い、低温・低SOC時の抵抗は一旦下がり、その後上昇する特性をもつ。

抵抗推移を減少項と増加項に分離することで、抵抗推移を精度良く予測することを可能にした。

また、新規寿命予測手法を活用することで、電池性能を使い切ることに貢献した (図3, 式)。

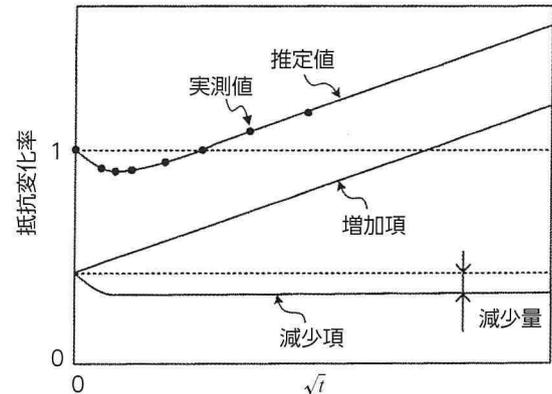


図3 寿命推定方法

$$R\% = \left\{ \underbrace{\frac{(1-x)(1+(1-h)kt)}{1+kt}}_{\text{減少項}} + \underbrace{x(1+a_0\sqrt{t})}_{\text{増加項}} \right\} \times 100 \dots (1)$$

$a_0$  : 増加項

$k$  : 減少項

$h$  : 減少量

$x$  : 正極抵抗と負極抵抗の割合

$t$  : 時間

## 4 駆動用バッテリーパック

### 4.1 概要・搭載

駆動用バッテリーパック（以下、バッテリーパック）をリアシート下に搭載することで、ラゲージ容量拡大と、低重心による優れた操縦性を実現した。新型カムリ HV のバッテリーパックは、前世代のカムリのバッテリーパックよりも 11.5L 小さく、15.2kg 軽くなっている（図 4）。結果として、リアシート後ろからリアシート下への搭載を実現し、ラゲージ容量の大幅な拡大（前世代カムリ HV 比較で 84L 増加）に貢献した（図 5）。

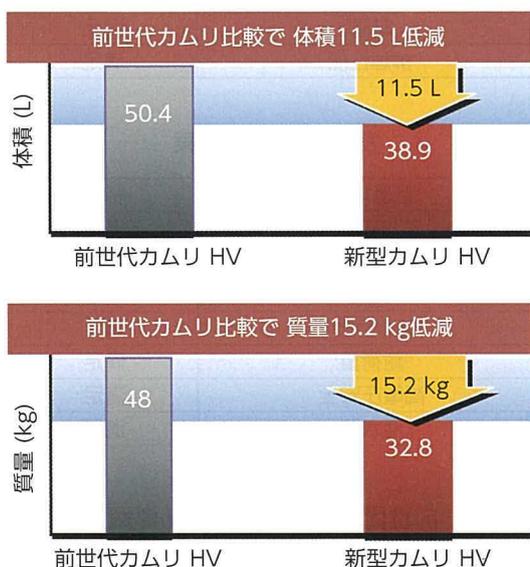


図 4 体格・質量比較

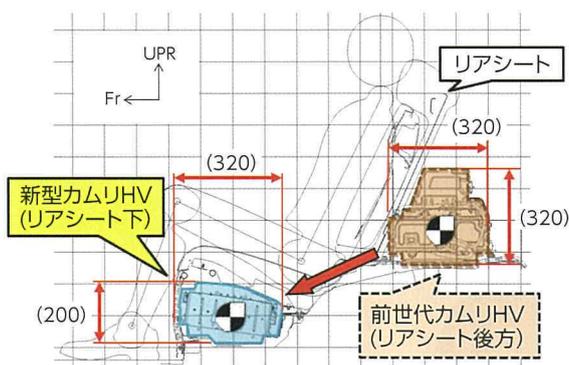


図 5 バッテリーパック搭載位置

### 4.2 諸元

表 4、図 6 に、バッテリーパックの諸元と外観を示す。先述のリチウムイオンセルを 70 個使用し、1.0kWh のエネルギーを備えている。構成としては、リチウムイオンセル 35 個を直列接続したバッテリースタックを、車両前後方向に 2 本搭載している。

表 4 バッテリーパック諸元

セル数 (個)	70 (35 × 2)
定格電圧 (V)	259
重量 (kg)	32.8
エネルギー (kWh)	1.0

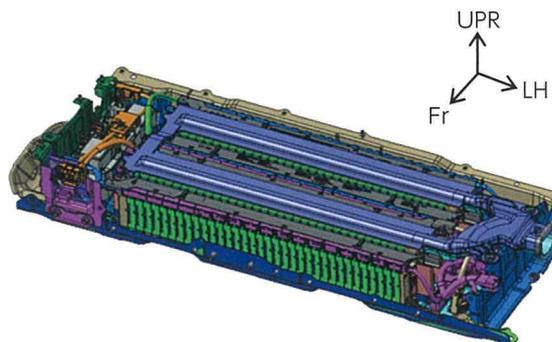


図 6 バッテリーパックの外観 (上部カバーを取り外した状態)

### 4.3 バッテリスタックの構成

図 7 は、バッテリースタック構造である。35 個のリチウムイオンセルを、樹脂ホルダを介して積層している。この樹脂ホルダは、リチウムイオンセル同士の絶縁と、冷却風経路を兼ねている。バッテリースタックは、両端の拘束プレート、および上下 4 本の鋼製バンドによって拘束されている。

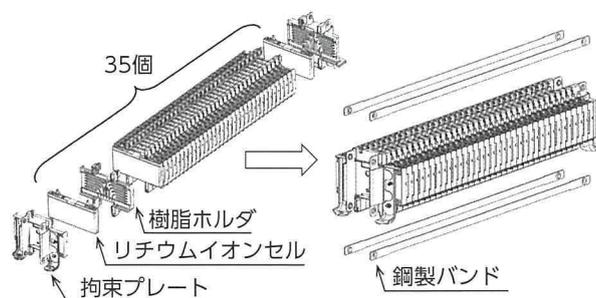


図 7 バッテリスタックの構成

### 4.4 冷却構造

バッテリースタックの冷却は、冷却風導入口をリアシート下に設置することで、冷却風量確保と冷却風温度低減を実現し、冷却性能を向上させた。

冷却風は、リチウムイオンセル間を下から両側に流れ、リチウムイオンセルを冷却し、リアシート下空間とラゲージに拡散排気される。これにより、吸気（冷却前の客室内の空気）と排気（冷却後の空気）を切り離し、リチウムイオンセルへの熱影響を抑制している（図 8、9）

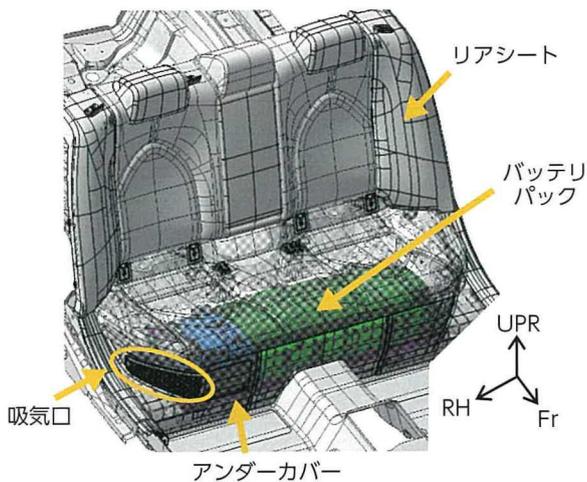


図8 リアシート下 搭載状態

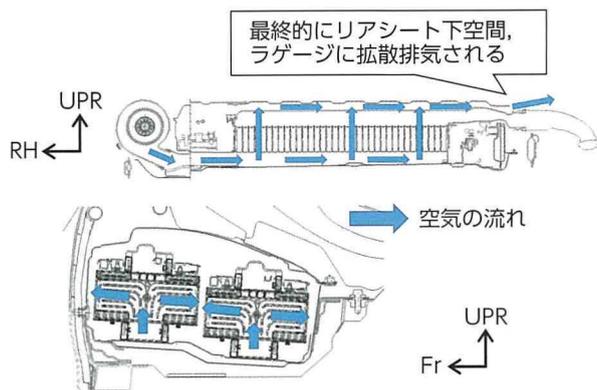


図9 バッテリーパック内の冷却風流れ

#### 4.5 安全性評価

バッテリーパックの安全性評価では、法規適合はもちろん、社内目標に基づいた厳しい条件の下、全てのバッテリーパック単体のユニット評価、および車両評価をクリアしている (表5, 6)。

## 5 おわりに

リチウムイオンセルの体格を低減しつつ、高入出力化することで、高い環境性能 (高燃費) を備え (表7)、軽量化・小型化に成功した。また、駆動用バッテリーパックをリアシート下に搭載することで、商品性の向上や、走りの楽しさを盛り込んだ車両の開発に成功した。

最後に、駆動用リチウムイオンセルとバッテリーパック開発にご協力いただいた関係会社の皆様に、深謝の意を表する。

表5 バッテリーパックユニット評価結果

評価項目	結果
振動	満足
高度シミュレーション	満足
衝撃 / 衝突	満足
機械衝撃	満足
落下	満足
熱拡散	満足
複合環境	満足
耐火	満足
過熱保護	満足
外部短絡	満足
過充電保護	満足
過放電保護	満足
塩水没	満足
結露	満足
排煙性能	満足

表6 車両評価結果

評価項目	結果
前突	満足
後突	満足
側突	満足
水かかり	満足
耐荷重	満足
高電圧安全	満足
浸水路	満足

表7 前世代・新型カムリ HV 燃費比較

仕向け	前世代カムリ HV	新型カムリ HV
燃費 (JC08) (km/l)	25.4	33.4

#### 参考文献

- (1) T. Soejima et al. : Battery Development for the new Camry HV. AABC Asia, 2018

#### 著者



副島 崇礼



伊藤 秀太

## トヨタフューエルセルシステム “TFCS” の紹介

Introduction to the Toyota Fuel Cell System (TFCS)

木崎 幹士 \*1

Mikio Kizaki

### 要旨

2014年12月、世界に先駆け、FCV “MIRAI” の一般販売を開始した。MIRAI に採用した燃料電池システム（トヨタフューエルセルシステム、TFCS）は従来から定評のあったFCVの魅力に一段と磨きをかけ、商品化に向けて最も大きな課題であったコストを大幅に低減し、世界初の一般販売を可能とした。

### Abstract

In December 2014, Toyota Motor Corporation launched the Mirai, a pioneering first step toward the general sale of fuel cell vehicles (FCVs). This was accomplished through the adoption of the newly developed Toyota Fuel Cell System (TFCS). The TFCS further enhances the established advantages of an FCV and substantially reduces the cost of the FC system, which had been a major challenge for FCV commercialization.

キーワード EV・HV システム, 燃料電池, 水素タンク, システム技術

## 1 はじめに

近年、環境・エネルギー問題への対応として、電気・水素の活用が期待されている。特に水素を燃料とする燃料電池自動車（FCV）は、クリーンで高効率という環境性能の高さに加え、モータを使った滑らかな走りや静粛性と、ガソリン車に近い航続距離や充填時間により、走りの楽しさと使い勝手の良さが両立できる高い商品性をもつ代替エネルギー車として注目されている。

トヨタ自動車は、水素を燃料とする燃料電池（FC）システムの開発を1992年にスタートし、2002年12月には世界に先駆けてFCVの限定リースを開始した。以降改良を重ね、2008年に導入したトヨタFCHV-adv（図1）では、主要技術課題であった航続距離と氷点下始動性の解決を目処付け、FCVの代替エネルギー車としてのポテンシャルの高さを実証してきた。

「本格普及につながる魅力をもち、世界初の“商品”と呼ぶことができるFCV」を狙いとして開発をスタートさせたものである。TFCSでは、従来から定評のあった性能や静粛性に一段と磨きをかけると同時に、商品化に向けて最も大きな課題であったFCシステムコストを大幅に低減した。本稿ではこのコスト低減アプローチを軸に、TFCSのシステム・ユニット開発について論述する。



図1 トヨタFCHV-adv

## 2 TFCSの開発

2014年12月、トヨタ自動車は世界に先駆けて、量産型FCVセダン“MIRAI”の一般販売を開始した（図2）。MIRAIに採用した燃料電池システム（トヨタフューエルセルシステム、TFCS）は、



図2 FCV “MIRAI”

\*1 パワートレーンカンパニー FC 製品開発部

### 3 FCシステムのコスト低減アプローチ

FCシステムの高コスト要因は、高価なFC固有材料、複雑なFCV専用システム(部品点数が多い)、量産効果小に大別される(表1)。以下に、これらの要因とその対応について述べる。

表1 FCシステムコスト解析

要因	対応内容
1. 高価なFC固有材料	<ul style="list-style-type: none"> <li>・使用量低減</li> <li>・代替材料の使用・開発</li> </ul>
2. 複雑なFCV専用システム	<ul style="list-style-type: none"> <li>・部品の統廃合</li> <li>・部品要求仕様適正化(市場実績F/B・法規・・・など)</li> <li>・部品構成見直し</li> </ul>
3. 量産効果小	<ul style="list-style-type: none"> <li>・量産部品(含む一部)流用</li> <li>・量産ライン流用</li> <li>・自動車メーカー間仕様統一による量産</li> </ul>

#### 3.1 FC固有材料のコスト低減

FCシステムでは、燃料電池のPt触媒や高圧水素タンクの炭素繊維に代表される高価な材料を多く使用している。トヨタFCHV-advのFCシステムに占めるFC固有材料費の割合は、かなりの比率であることがわかる(図3)。

TFCSでは、FCユニットの小型軽量高性能化による材料使用量の低減と、高価な材料の汎用材化への取り組みなどにより、材料コストを低減している。

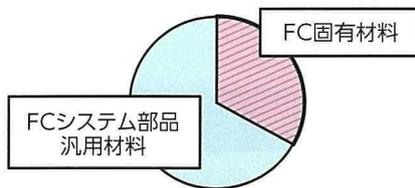


図3 コスト内訳

##### 3.1.1 FCスタックにおける材料コスト低減

①セル流路構造の革新：従来FCスタックのセル流路構造は一般的な溝流路であり、電極と接する流路リブ下は生成水が滞留しやすく、酸素の拡散が悪いため発電が不均一となる(図4)。これに対して、発泡焼結体などの多孔体流路により、細孔による毛管力で電極から生成水を吸い出し、酸素の拡散を確保して高性能化する検討がされているが、高圧損、多孔体内の残水、製造品質、コストなど、課題がある。

今回の新型FCスタックでは、電流密度アップと電圧安定性確保を狙い、空気流路として革新的な

3Dファインメッシュ流路を開発した(図5)。3Dファインメッシュ流路は、3次元的な微細格子流路であり、空気を電極に当たる方向に乱流的に流すことで、触媒層への酸素拡散を促進している。また、流路の表裏形状最適化と流路表面の親水化により、電極から排出される生成水を速やかに流路表面に引き寄せて、流路の水詰りによるガス流れの阻害を防止し、セル面内の発電均一化とセル間電圧ばらつき低減を図っている。さらに、セル面内でメッシュ流路パターンを変えることが可能であり、空気極上流部では乱流を緩和して、外部加湿レス(後述)の場合でも電極の乾きを抑制している。

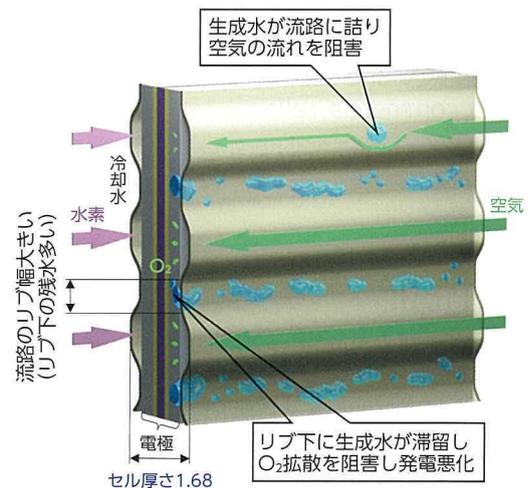


図4 従来セルの溝流路構造

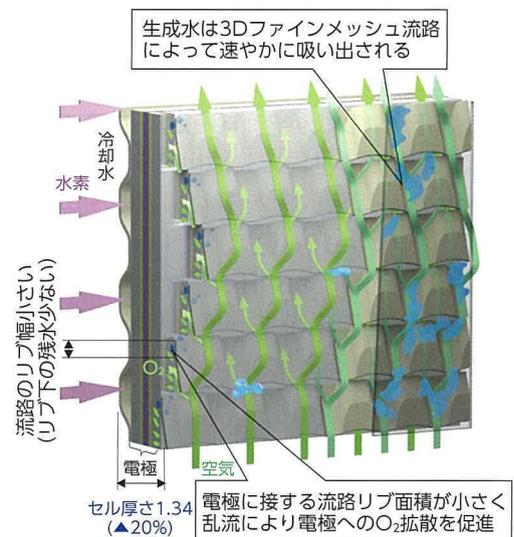


図5 新型セルの3Dファインメッシュ流路構造

②電極の革新：新型セルの触媒では、Pt/Co合金比率の最適化により、活性を1.8倍に向上させた上、カーボン担体を従来の中空から中実タイプに

することで、担体内部で有効に機能しにくかったPt触媒を減らすことにより、Pt利用率を約2倍に向上させた。

このように、セル流路構造および、電極を改良した結果、ガス拡散性向上による濃度過電圧低減、プロトン伝導性向上による抵抗過電圧低減、触媒活性向上による活性過電圧低減を実現し、単位面積当たり発電可能電流を大幅に増大できた（電流密度が従来比2.4倍に向上、図6）。

上記の高性能化（電流密度2.4倍）によって、出力当たりの電極面積は59%低減し、合わせてPt触媒の利用率向上でPt量を1/3に低減でき（図7）、単位面積当たりの電極材料費も削減した。また、電解質膜を1/3に薄膜化したことで、高価な電解質ポリマの使用量も低減した。

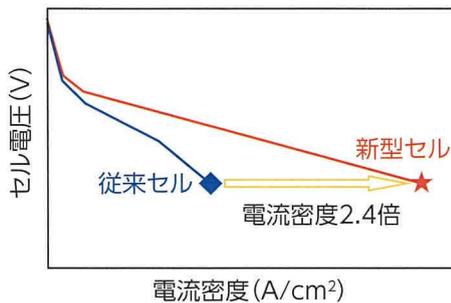


図6 新型セルのI-V特性（電流密度）

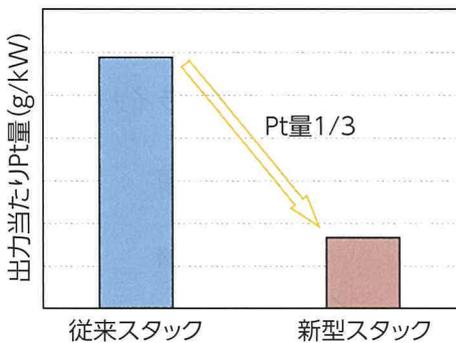


図7 出力当たり触媒Pt量

③セパレータなどの低コスト化：従来、セパレータには接触抵抗低減と耐食性確保のため、基材のステンレス（SUS316L）に高価なAuめっきの表面処理を施していた。基材を耐食性に優れるチタンにすることで、表面処理に求められる機能を接触抵抗低減のみに簡略化できたため、従来のAuめっきから新規に開発したカーボンナノコートPAC（ $\pi$ -Conjugated Amorphous Carbon）に変更し、

貴金属の使用を廃止して大幅にコストを低減した（図8）。

また、FCスタック締結構造も機能統合により簡素化し、締結部品点数を削減して小型・低コスト化を図った。



図8 セパレータの表面処理

これらの開発の結果、新型FCスタックでは従来比2倍以上の体積出力密度（3.1kW/L）を達成した（図9）。最大出力は、従来の90kWから114kWに27%アップ、セル当たりの出力は36%アップした。一方、セルの体格は、高電流密度化（2.4倍）および、薄型化（20%低減）により24%小型化した。また、セパレータの材質をステンレスから比重の小さいチタンにして、セルの質量を39%低減した。

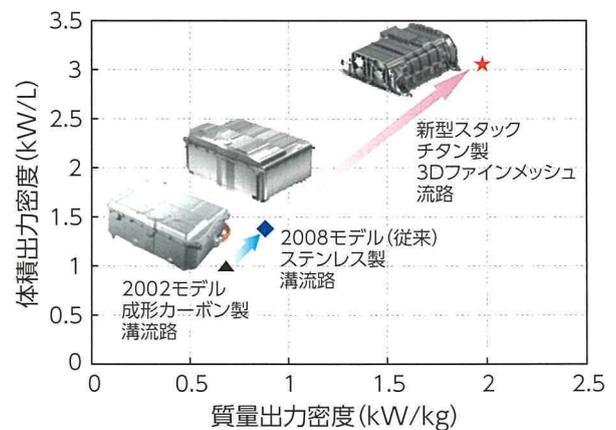


図9 FCスタックの体積・質量出力密度

### 3.1.2 高圧水素タンクにおける材料コスト低減

①低コスト炭素繊維：高圧水素タンクのコストは炭素繊維が大きな割合を占めるため、繊維自体の低コスト化と使用量低減の両方が重要となる。従来モデルでは航空機にも使用されている高級グレードの炭素繊維を採用していたが、TFCSでは炭素繊維メーカーの協力により、汎用グレード品の改良で強度を航空機グレード並に高め、炭素繊維の低コスト化を実現した。

②炭素繊維の使用量低減：図10に、高圧水素タンクの構成を示す。高圧水素タンクは、最内層の水素を封入する樹脂ライナ、その外側の強度を受け持つ炭素繊維強化プラスチック（Carbon Fiber Reinforced Plastic：CFRP）層および、両端のアルミ製口金などからなる。低コスト化と軽量化のために、主にCFRP積層を見直し、大幅なCFRP使用量の低減を目指した。

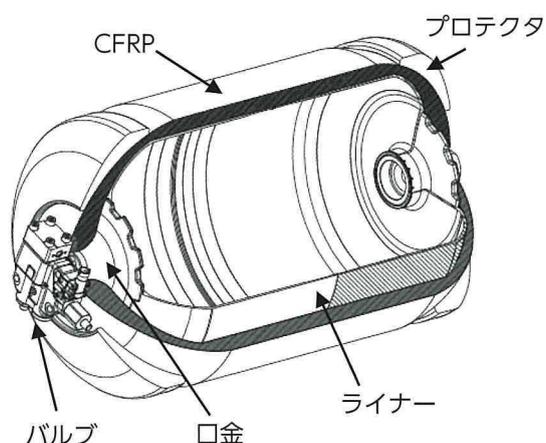


図10 高圧水素タンクの構成

高圧水素タンクのCFRP積層パターンは、胴体部の強度を受け持つフープ巻（円周方向）、ドーム部の強度（軸方向）を受け持つヘリカル巻および、それらの境界部を補強する高角度ヘリカル巻の3種類を組み合わせている（図11）。

このなかで、高角度ヘリカル巻は軸に対して約70°の角度で巻かれ、必然的にドーム部にも巻かれることになるが、円周方向の応力分担は図12に示すように低く、タンク強度にはあまり貢献していないことが分かった。

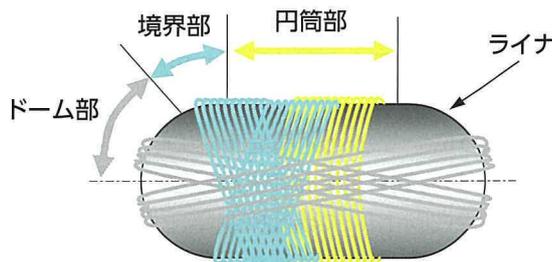


図11 高圧水素タンクの積層パターン

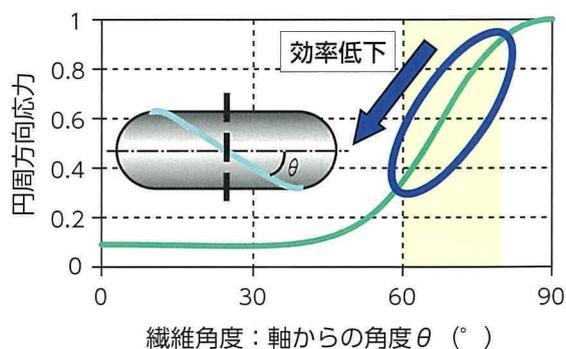


図12 繊維角度と強度効率

従来モデルでは高角度ヘリカル巻がCFRP層全体の約25%を占めているため、ここに着目し、境界部の補強に高角度ヘリカル巻を使用しないで実現する積層方法を開発した（図13）。

従来積層方法に対する変更は以下の3点である。

- ①ライナー形状を変更し、境界部を平坦化、フープ巻を積層できるよう変更
- ②①の平坦部にフープ巻で従来ライナーの形状を形成し、境界部を補強
- ③フープ巻を内層に集中的に積層

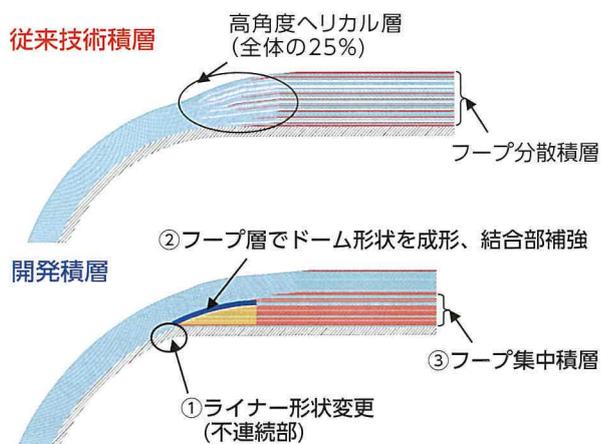


図13 新旧積層構成の比較

上記の変更により、高角度ヘリカル巻を廃止できた上、発生応力が高い内層側に円周方向の強度効率が高いフープ巻を集中することにより、従来積層に対してCFRPを20wt%削減することができた。他にも、□金形状の最適化によるCFRP低減と合わせて、世界トップレベルの水素貯蔵性能となる5.7wt%（貯蔵可能な水素質量/タンクシステム質量）を実現し、高圧水素タンクの低コスト化に大きく寄与した（図14）。

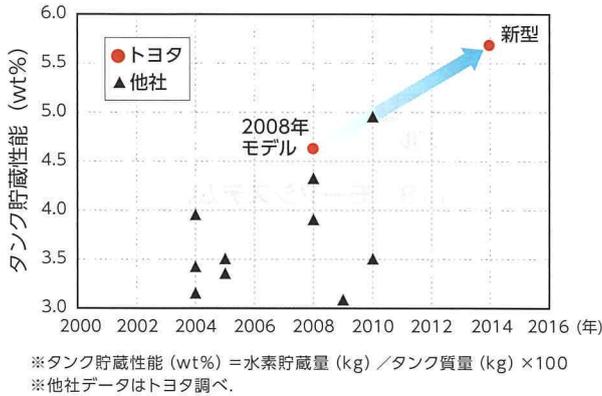


図14 高圧タンクのタンク貯蔵性能比較

### 3.2 FCシステム簡素化

FCシステム簡素化のためには、部品の廃止や統廃合は不可欠である。図15に従来FCシステムの構成を示す。部品流用（黄色で表示）に加え、部品の統廃合（水色で表示）を進めた。

#### 3.2.1 加湿器の廃止

FCシステム簡素化のなかでも、特にTFCSでは世界初となる外部加湿器の廃止を実現している。燃料電池の電解質膜内でのイオン伝導のためには、膜に適度な水分が含まれていることが必須であるが、今回、燃料電池スタックやシステム制御の改良により、加湿器廃止のコンセプト「空気側（カソード）下流の生成水の、水素側（アノード）を介した内部循環による空気側上流への加湿（図17）」を実現した。

新型セルの水素流路は空気流路に対し電極を挟んでマクロ的には対向流になっており（図18）、セル内空気流路下流の生成水（逆拡散水）を活用して、水素流路上流部で水素を加湿し、水素の流れにより水素下流部に水蒸気を運び、そこで電解質膜を通じて水を逆拡散させ、電極が乾きやすい空気流路上流部を加湿する仕組みとした。また、電解質膜は、従来の1/3に薄膜化して生成水の逆拡散を促進すると

ともに、プロトン伝導性を3倍に向上させた。

このようにして、生成水のセル内部循環による自己加湿を実現し、外部加湿器なしでも高温性能が発現できるようにしている。

#### 3.2.2 高圧水素タンク本数の削減

また、従来モデルでは高圧水素タンクを4本床下に搭載していたが、特に各タンクに取り付けられているバルブ類が高コストの要因であり、本数の削減は必須であった。また、将来、セダンへFCVを展開しようとする場合、タンク本数が多いことはパッケージングの障害にもなる。

タンク本数の削減のためには、燃費の向上による搭載水素量の低減と、限られたスペースのなかでより多くの水素を搭載するための効率的なタンクのパッケージングが重要である。「MIRAI」では、燃費を前モデルから約20%向上させ、かつ、セダンタイプの車両に客室空間を損なうことなく必要水素量を搭載するため、2種類の異なる形状のタンクを新規開発することによって、タンク本数を2本に削減した。

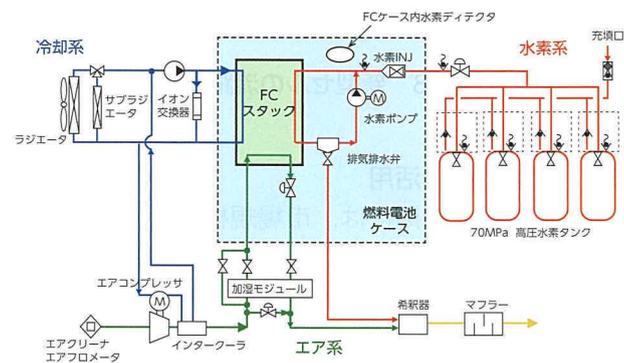


図15 従来FCシステムの構成

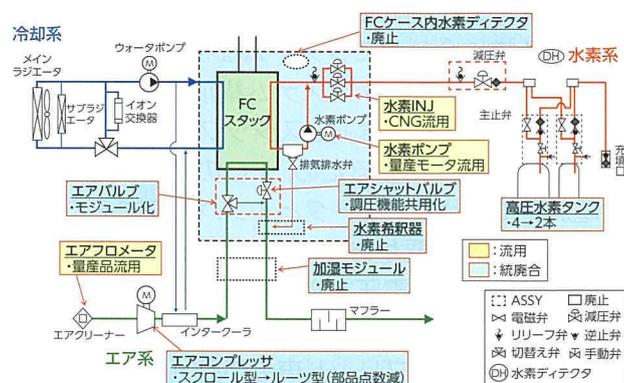


図16 TFCSの構成

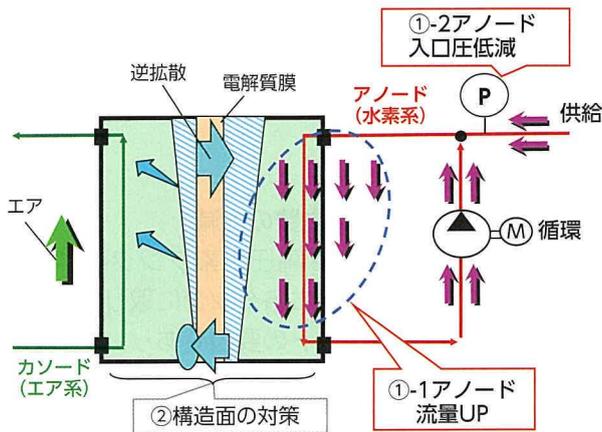


図 17 自己加湿による加湿器の廃止

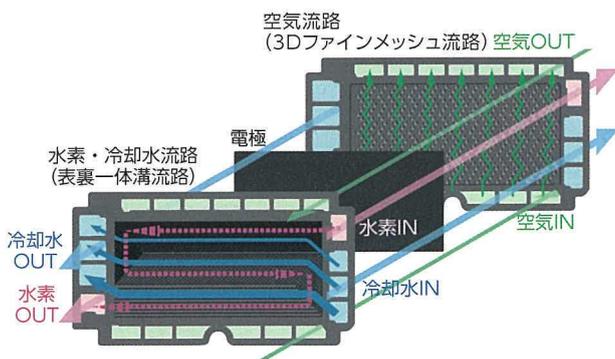


図 18 新型セルの流路構造

### 3.3 量産部品の活用

FCVの導入初期には、市場規模はガソリン車ほど大きくはないと予想され、単純な量産効果によるコスト低減は難しい。そのため、モータシステム部品や、燃料電池を運転するためのシステム部品について、既存の量産部品の流用によるコスト低減を図った。

今回、トヨタのハイブリッド車で量産されているモータシステム部品を最大限流用するため、それらの部品仕様に合わせてシステム仕様を変更したが、トヨタFCVのモータシステム構成（図19）において、従来モデルではFCスタックとインバータが直結され同電圧となるため、FCの特性（低電圧・大電流）に合わせたモータとインバータをそれぞれ専用設計する必要があった。そこで、TFCSでは、新たに燃料電池の電圧を変換するFC昇圧コンバータ（FDC）を追加することにより、モータとインバータは量産ハイブリッド車の部品（高電圧・低電流）の流用が可能となり、モータシステムの小型・低コスト化を実現した。

また、FDCの構成部品であるIPMやリアクトルなどにも量産ハイブリッド車の部品を多用して、低コスト化を図っている。

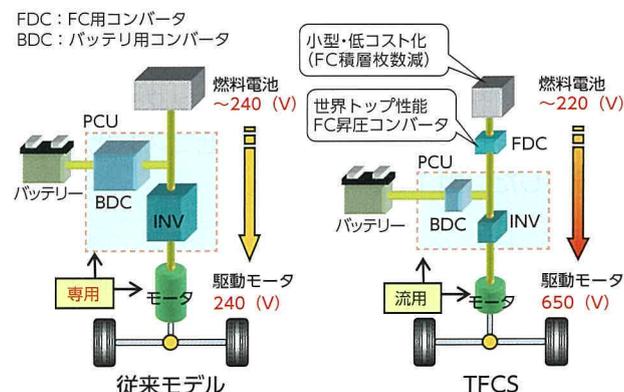


図 19 モータシステム構成

## 4 まとめ

FCVの量産化・商品化は、協力会社の方々を含め、非常に多くの関係者の長く険しい道のりを超えての成果である。と同時に、大量普及に向けては長いチャレンジの始まりでもある。

車名“MIRAI”は、日本語の“未来”を語源としており、グローバル車名として採用された。“MIRAI”には、その名の通り「未来を切り拓く、次世代のクルマ」という意味が込められている。

持続可能なモビリティの実現・エネルギーの多様化に対し、最も将来性の高い技術の一つとして、今後もFCVの開発を推進し、水素社会形成に向けた取り組みを、官庁・関係業界の方々と一緒に積極的に推進していきたい。地球・未来・大切な人のために。

本論文は、下記発表済み論文の転載である。

木崎幹士：トヨタフューエルセルシステム“TFCS”の紹介。自動車技術。Vol.69, No.5, 2015, p. 51 - 56

### ■著者



木崎 幹士

## 高性能・低コスト FC スタックの開発

Development of High Performance and Low Cost Fuel Cell Stack

水野 誠司 \*1  
Seiji Mizuno

紺野 周重 \*1  
Norishige Konno

壺阪 健二 \*1  
Kenji Tsubosaka

西海 弘章 \*1  
Hiroaki Nishiumi

窪 英樹 \*1  
Hideki Kubo

戸沼 利之 \*1  
Toshiyuki Tonuma

### 要旨

燃料電池車 (FCV) の普及に向け、FC スタックは画期的な高性能・小型化および低コスト化が必要である。2014年12月に、世界に先駆け市販化した普及型FCV「MIRAI」に採用されている新型FCスタックは、セル流路構造と電極の革新により、世界初の加湿レスシステムを実現し、電流密度2.4倍の高性能化と体格42%減の小型・軽量化によって、従来比2倍以上の、出力密度3.1kW/L、2.0kW/kg(世界トップレベル)を達成し、セダンの床下搭載を可能にした。さらに、電極の耐久性を従来比3倍およびスタックの耐衝撃性・防水性・防錆など信頼性を確保した。一方、コストに関しては、スタック締結構造の簡素化、電極触媒のPt量72%低減、セパレータ表面処理のAuめっきを新規開発したカーボンナノコートに替えることで、大幅に低減した。

### Abstract

Greatly enhancing the performance and reducing the size and cost of the fuel cell (FC) stack is an important part of measures aimed at facilitating the widespread adoption of fuel cell vehicles (FCVs). The new FC stack installed in the Mirai, the pioneering mass-production FCV that was launched in December 2014, adopted an innovative cell flow-field structure and electrodes to realize the world's first humidifier-less system. Compared to the previous FC stack, these innovations improved performance by increasing current density by a factor of 2.4, and reduced size and weight by decreasing the external volume of the stack by 42%. As a result, this FC stack achieved a power density of 3.1 kW/L and 2.0 kW/kg, one of the highest in the world. These figures are more than twice as high as the previous model and allowed the FC stack to be installed under the floor of a sedan-type FCV. Furthermore, the durability of the electrodes was improved by a factor of 3 compared to the previous stack, and the reliability of the FC stack against impacts, water exposure, and corrosion was ensured. The cost of the FC stack was also greatly reduced by simplifying the stack tightening structure, cutting the amount of platinum (Pt) in the electrocatalyst by 72%, and replacing the gold (Au) plating of the separator surface treatment with a newly developed carbon nano-coating.

キーワード FCスタック, セル, 出力密度, 加湿レス, 流路構造, 電極, 耐衝撃性, 耐久信頼性, コスト

## 1 はじめに

燃料電池は、水素を燃料とし、空気中の酸素と電極触媒上で電気化学的な反応によって発電する。発電にともなって生成するのは水のみで、クリーンかつ高効率であり、エネルギーおよび環境問題を解決する手段として期待されている。自動車用燃料電池には、低温領域で発電でき、応答性が早く、電流密度が高い、固体高分子形燃料電池PEFC (Polymer Electrolyte Fuel Cell) が採用されている (図1)。

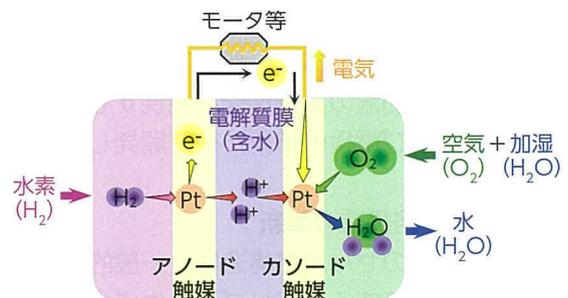


図1 PEFCの発電原理

このPEFCは、性能を発現する上で、電解質膜および触媒層のイオノマを加湿含水させて、プロ

\*1 パワートレインカンパニー FC 製品開発部

トン伝導抵抗を低く抑えることが重要であり、通常は、外部加湿器によって空気を加湿してFCスタックに供給するシステムになっている(図2)。

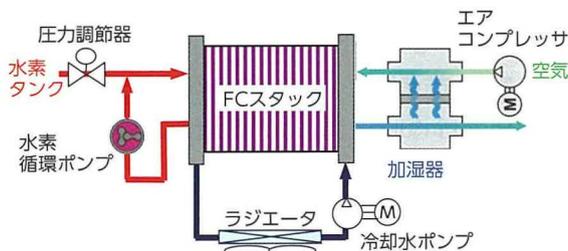


図2 FCシステム (従来)

トヨタの普及型FCV(燃料電池車)では、FCシステムの簡素化によるコンパクト化、低コスト化、信頼性向上の観点から、加湿器を廃止した世界初の加湿レスシステムで発電するFCスタックの開発にチャレンジして、世界トップレベルである出力密度3.1kW/Lを実現し、セダンの床下搭載を可能にした。さらに、電極の耐久性および床下搭載特有の環境における、スタックの耐衝撃性・防水性・防錆など信頼性を確保した。一方、コストに関し、スタック締結構造簡素化による部品点数削減、電極触媒のPt量72%低減、セパレータ表面処理のAuめっき廃止により、高価な貴金属使用量を大幅に低減し、低コスト化を実現した。

本稿では、高性能化のキー技術であるセル流路構造および電極の革新、スタック締結構造簡素化による小型化、スタックの耐衝撃性・防水性・防食など信頼性向上技術、低コスト化技術について述べる。

## 2 FCスタックの高性能化

発電性能の向上を図る上で、触媒層へのO<sub>2</sub>拡散性とプロトン伝導性を促進するために、セルの水マネジメントが重要である。新型スタックでは、生成水による自己加湿のみで性能を発現するためのセル流路構造および電極の革新技術を開発した。

### 2.1 セル流路構造の革新

従来スタックのセル流路構造は、一般的な溝流路であり、電極と接する流路リブ下は生成水が滞留し易く、O<sub>2</sub>拡散が悪いため発電が不均一となる<sup>(1)</sup>。また、ストレート溝流路は、生成水のフラッシングによりガスの流れが阻害され易く、電圧安定性に課題があった(図3, 4)。

一方、発泡焼結体などの多孔体流路では、細孔による毛管力で電極から生成水を吸い出し、O<sub>2</sub>拡散を確保して高性能化する検討がなされている。しかし、圧損が高い、多孔体内の残水が多い、製造品質、コストなどの課題がある<sup>(2)</sup>。

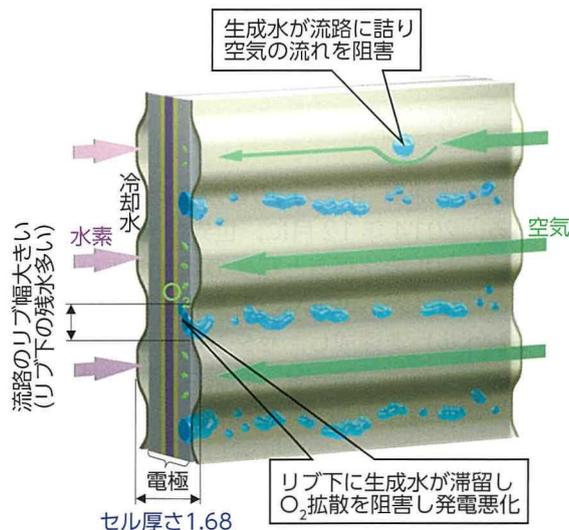


図3 従来セルの溝流路構造

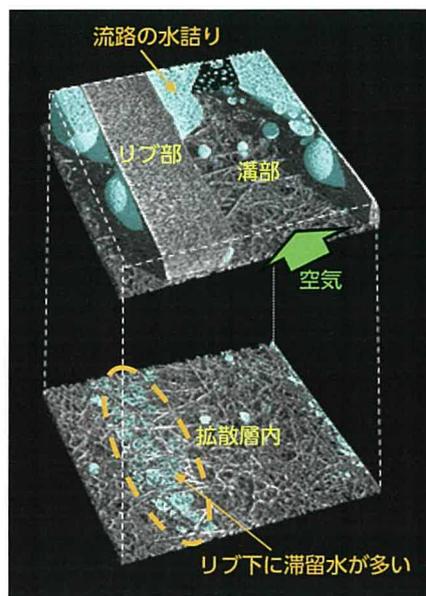


図4 溝流路の残水状態 (X線CT)

新型スタックでは、電流密度アップと電圧安定性確保のため、空気流路として革新的な3Dファインメッシュ流路を開発した。3Dファインメッシュ流路は、3次元的な微細格子流路であり、空気は乱流的な流れと電極にあたる方向に流すことで、触媒層へのO<sub>2</sub>拡散を促進している。また、3Dファインメッシュ流路の表裏形状最適化と、流路表面を親水化することにより、電極から排出される生成水を

速やかに流路表面に引き寄せて（誘引導水），流路の水詰りによるガス流れの阻害防止と，拡散層内の残水量低減によるガス拡散性確保により，セル面内の均一発電とスタックのセル間電圧ばらつき低減を図っている．さらに，セル面内で 3D メッシュ流路パターンを変えることが可能であり，空気下流では乱流を緩和して，ドライ空気による電極の乾きを抑制し，高温性能の向上を図っている（図 5，6）．

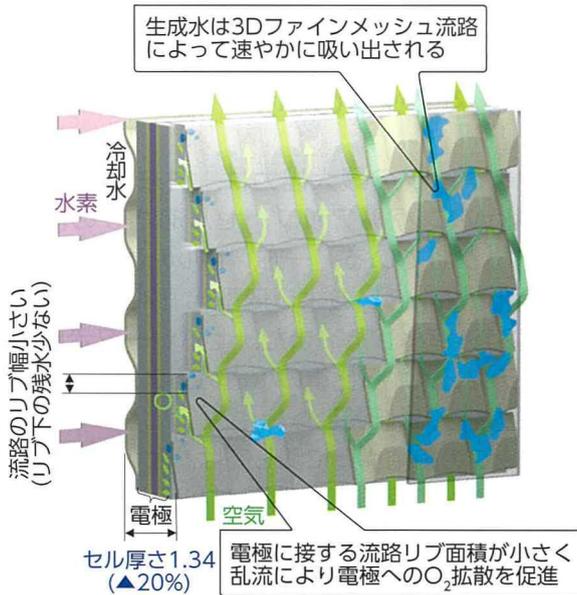


図 5 新型セルの 3D ファインメッシュ流路構造

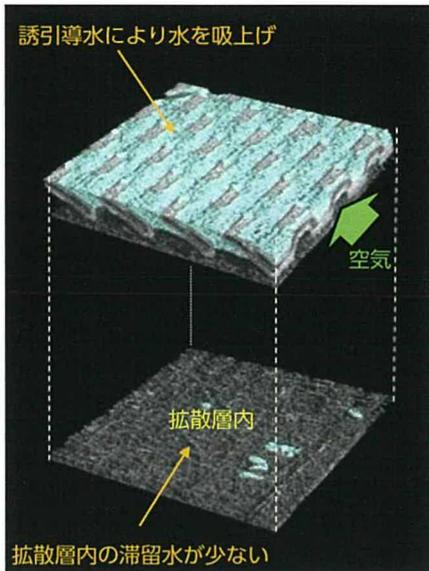


図 6 3D ファインメッシュ流路の残水状態 (X線 CT)

一方，水素流路は冷却水流路と表裏一体の溝流路である．2 ターン 3 段のカスケード構造で，水素と空気は電極を挟んでマクロ的には対向流になって

おり，空気下流の生成水（逆拡散水）を活用して導入水素を加湿し，水素循環ポンプにより水素下流に水蒸気を運び，電極が乾きやすい空気上流を加湿する仕組みで，生成水のセル内部循環による自己加湿を実現している．また，冷却水が空気下流よりも乾きやすい上流側に多く流れる流路構造とし，電極から水分が蒸散するのを抑制しており，加湿レスでも高温性能が発現できるようにしている（図 7，8）．

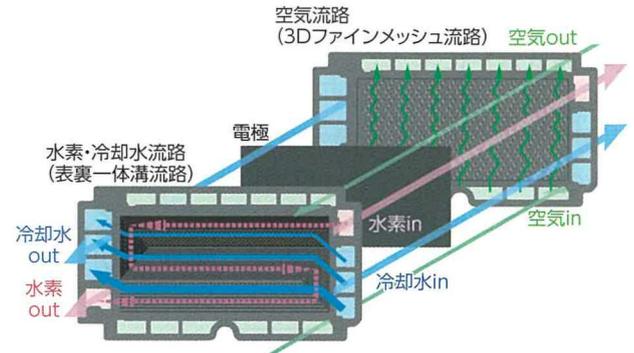


図 7 新型セルの流路構造

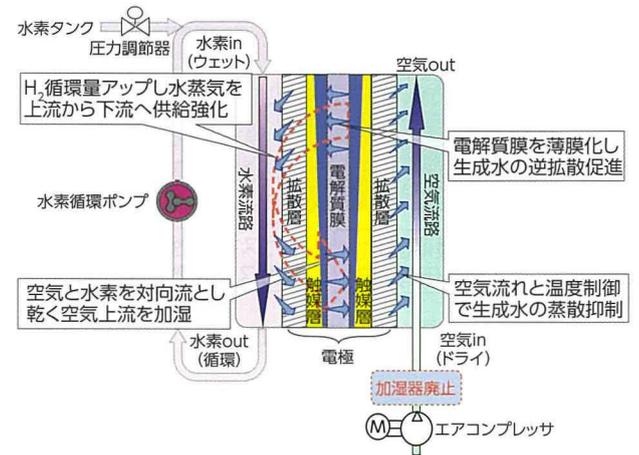


図 8 セル面内の自己加湿概念図

## 2.2 電極の革新

加湿レスで高性能化を図るために，電解質膜は従来の 1/3 に薄膜化して生成水の逆拡散を促進し，プロトン伝導性を 3 倍に向上した．一方，低加湿運転における反応副生成物である過酸化水素やヒドロキシラジカルの濃化による，電解質膜の化学劣化抑制のため，電極中にラジカルクエンチャ添加およびシステム補機部品からの Fe イオンコンタミ低減を図り，クロスオーバー寿命を確保している．

触媒層は，アイオノマの低 EW 化（官能基増）とアイオノマ比率適正化により，プロトン伝導性とガス拡散性の両立を図った．触媒は，Pt/Co 合金

比率の最適化と酸処理により、活性を1.8倍に向上、担体カーボンは、中空から中実タイプにすることで、Pt触媒をカーボン表面に担持してO<sub>2</sub>拡散抵抗を低減、特に低加湿下において反応に寄与する有効なPt利用率を約2倍に向上した。また、Pt粒径および粒度分布を適正化して、電位変動耐久におけるPtの溶解・粒成長による活性反応面積低下を抑制している。

拡散層は、カーボンペーパー基材のカーボンファイバーとバインダとの比率最適化および低目付化(45%低減)によって、ガス拡散性向上を図った。さらに、カーボンペーパー基材の薄層化、基材と触媒層の界面に形成する撥水層MPL(Micro Porous Layer)のカーボンブラック粗粒化(細孔径アップ)による透水圧低減により、排水性を良くして、ガス拡散性を2倍に向上している<sup>(3)</sup>(図9、10)。

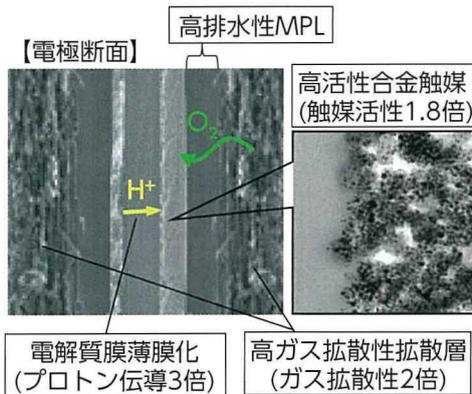


図9 電極の物性向上

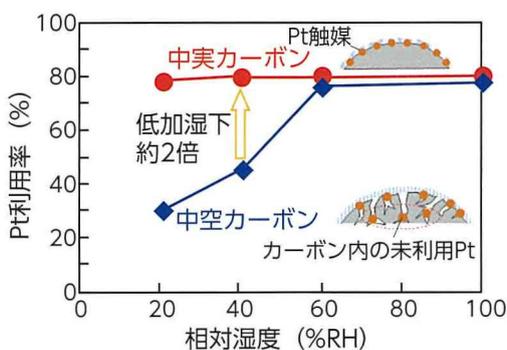


図10 触媒のPt利用率向上

上記のセル流路構造および電極の革新によって、ガス拡散性向上による濃度過電圧低減、プロトン伝導性向上による抵抗過電圧低減、触媒活性向上による活性過電圧低減で、電極の単位面積あたり掃引できる電流を大幅に増大でき、電流密度を従来比2.4倍に向上した(図11)。

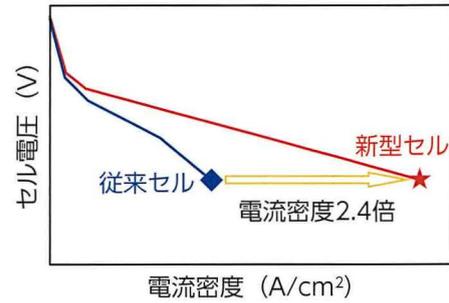


図11 新型セルのI-V特性(電流密度)

### 3 FCスタックの小型・軽量化

新型スタックの最大出力は、従来の90kWから114kWに27%アップ、セルあたりの出力は36%アップしている。一方、セルの体格は、高電流密度化(2.4倍)および薄型化(20%低減)により、24%縮小した。また、セパレータ流路の材質をステンレスから比重の小さいチタンにして、セルの質量を39%低減した。

スタックの締結構造に関しては、セルの積層を従来の2列から1列化して締結プレートを1/2に縮小した。また、スプリングによる定圧締結からセルの内部バネ性を活用した定寸締結により、スプリングを廃止した。さらに、スタックケースは、プレス品からアルミ鋳造品にすることで、締結強度部材としての機能を兼ね備えて、締結部品点数を削減し、体格を42%低減(64⇒37L, 108⇒56kg)した(図12)。

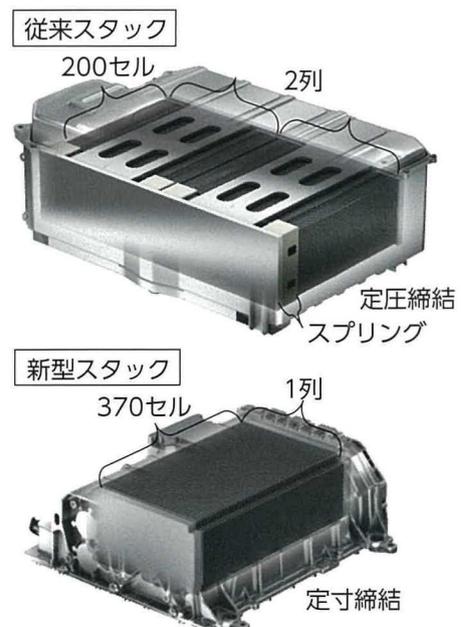


図12 FCスタックの締結構造

以上、高性能化と小型・軽量化により、出力密度を従来比2倍以上の3.1kW/L、2.0kW/kgに向上して、セダンの床下搭載を可能にした（図13、14）。

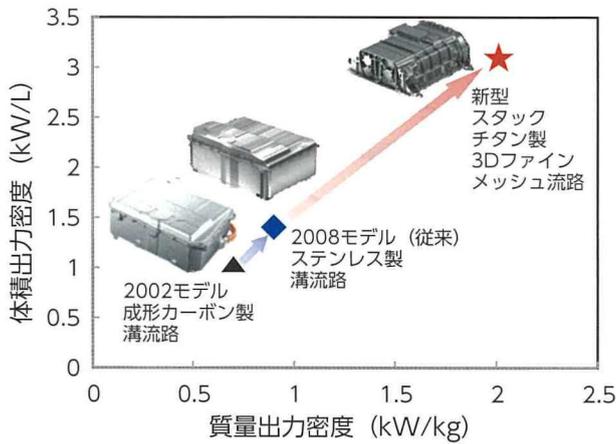


図13 FCスタックの体積・質量出力密度

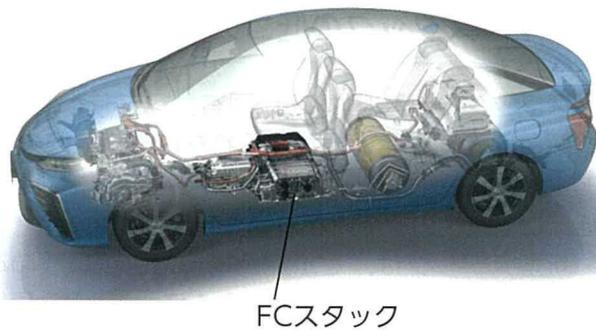


図14 新型FCスタックの床下搭載

## 4 FCスタックの信頼性確保

新型FCスタックの床下搭載における特有の環境に対し、①車両衝突や路面干渉等の衝撃入力、②車両冠水路走行時などの防水、③塩害地域の走行を想定した防錆を考慮した信頼性確保が必要である。

### 4.1 FCスタックの衝撃入力への対応

新型FCスタックは、370枚のセルが積層締結されており、セル間は、ガスケットにより水素・空気・冷却水をシールしている。衝撃入力に対し、高電圧、水素安全の観点から、FCスタックのセル積層ずれによるセル間のシール不良を防止する必要がある。

FCスタックは、締結荷重とセル間の摩擦係数により生じる摩擦拘束力で構造を保持している。セル

積層ずれを防止するためには、衝撃入力に対して十分な摩擦拘束力が必要である。そこで、摩擦拘束構造におけるFCスタックの耐衝撃性能を、実験およびシミュレーションにより明らかにした（図15）。その結果、FCスタックの耐衝撃性能は、車両の衝撃入力に対して十分満たしていることが分かり、路面干渉や軽衝突時の入力に対して、摩擦拘束力で対応可能なことが分かった。

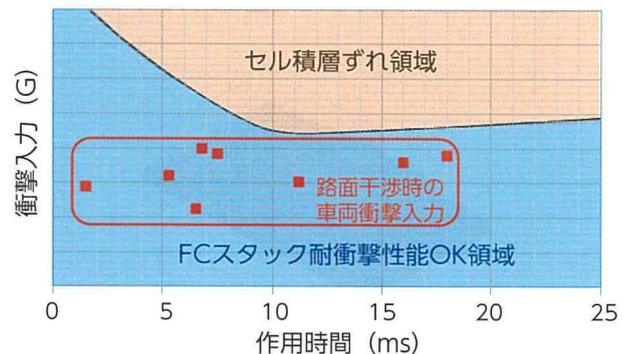


図15 FCスタック（摩擦拘束構造）の耐衝撃性能

一方、高速衝突（法規衝突やそれ以上の衝突）などの高い衝撃がスタックに入力され、FCスタックの摩擦拘束力を超えた場合におけるセル間のシール不良を防止するため、セル積層ずれ量を規定量以下に抑える外部拘束構造を採用した。外部拘束構造は、FCスタックに衝撃入力があった際に、セル積層体のセル界面に発生するせん断力を外部拘束反力により低減し、ずれ量を抑制する構造である（図16）。外部拘束反力は、衝撃でスタック積層体が動的撓みを起こした際、外部拘束と接触することで得られる。必要な反力を得るために、セルの撓み特性を把握し、セルと外部拘束間の距離および外部拘束剛性の最適化を図った。

以上のように、通常走行時の入力に対しては、摩擦拘束力でセルずれを防止し、高い衝撃入力時に外部拘束から必要な反力を得て、セルずれを規定量以下に抑えることで、幅広い衝撃入力に対応した。

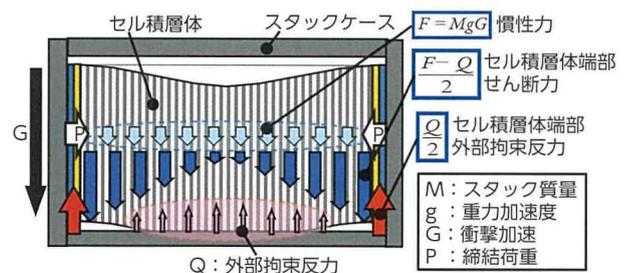


図16 FCスタック外部拘束構造のコンセプト

## 4.2 FC スタックの防水への対応

FC スタックの床下搭載は、地上高が低いため、高電圧安全の観点から、水跳ねや冠水路走行におけるFC スタックの防水性能の確保が必要である。

車両冠水路走行時に必要な耐水圧を定量化するために、車両での実測とシミュレーションにより検証した結果、シミュレーションによる予測と実測は良い一致を示し、これを元にスタック各部品の防水設計の最適化を図り対応した (図 17,18)。

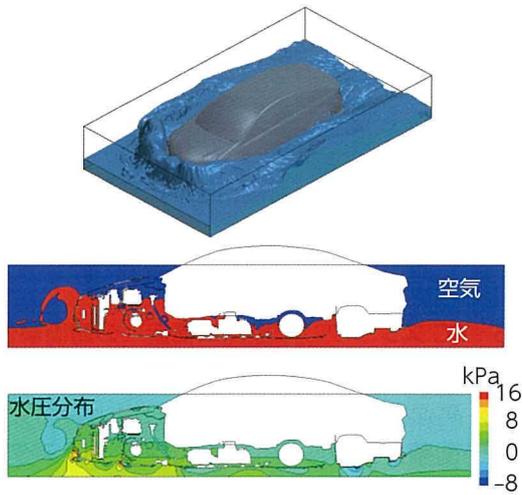


図 17 車両冠水路走行時の水圧分布 CAE 結果

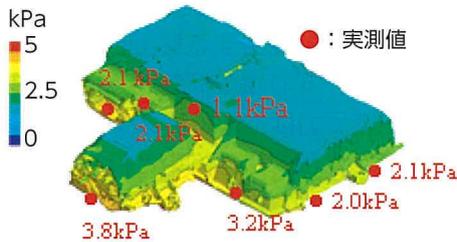


図 18 FC スタック水圧分布の実測と CAE 予測比較

## 4.3 FC スタックの防錆への対応

防錆性能に関して、FC スタックの搭載位置が低いため、凍結防止剤や水跳ね、水没の影響を受け易く、さらに作動温度も低いため、FC スタック周りは水が乾き難く、エンジン車と比較して不利な環境下に曝されており、防錆への対応が必要である。

新型 FC スタックでは、腐食環境を考慮し、アルミ製のスタックケースにはアルマイト処理、スタックロアカバーにはカチオン電着塗装、締結ボルトにはジオメットの表面処理を施し、母材の腐食を抑制する構造を採用した。また、シールガスケットは、母材腐食発生時のアルカリ環境に対応するために、

エチレン・プロピレン・ジエンゴム (EPDM) を採用し、床下搭載における防錆性能を確保した<sup>(4)</sup> (図 19)。

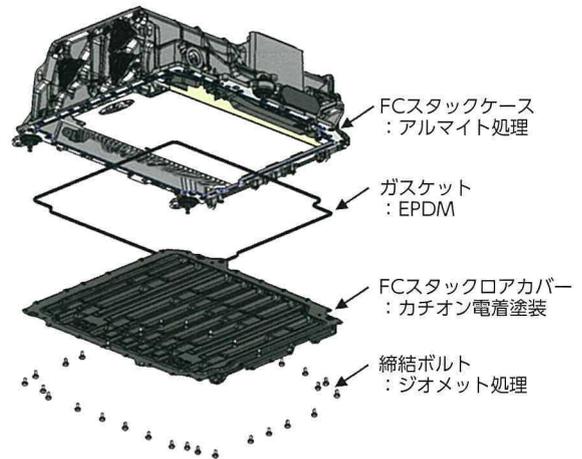


図 19 FC スタック防錆対応

## 5 FC スタックの低コスト化

スタックのコストは、FC 固有材料である電極の電解質膜と、量産効果が得られない電極触媒の Pt およびセパレータ表面処理の Au めっき (接触抵抗低減と耐食性の機能) が高価である。

新型スタックは、セル流路構造および電極の革新による高性能化 (電流密度 2.4 倍) と、FC 昇圧コンバータの採用によるスタック積層セル数の削減 (400 ⇒ 370 セル) によって、出力あたりの電極面積を 59% 低減した。さらに、電解質膜の膜厚を 1/3 に薄膜化して高価な電解質ポリマの使用量を低減、触媒の高活性化と Pt 利用率アップにより Pt 量を 72% 低減し、単位面積あたりの電極材料費を削減した (図 20)。

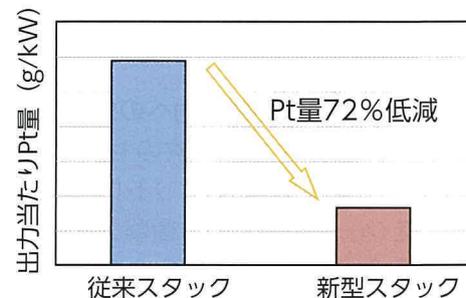


図 20 出力あたり触媒 Pt 量

一方、セパレータ（流路部材）に関しては、基材を従来のステンレス（SUS316L）から耐食性に優れたチタンにすることで、表面処理を接触抵抗低減の機能だけに簡略化し、従来のAuめっきから新規に開発したカーボンナノコートPAC（ $\pi$ -Conjugated Amorphous Carbon）の採用により、貴金属を廃止して大幅にコストを低減した（写真1）。

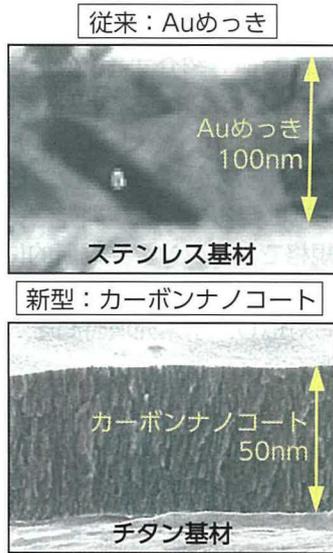


写真1 セパレータの表面処理

また、スタック締結構造も、先に記載したように機能統合により簡素化し、締結部品点数を削減して低コスト化を図った。

## 6 まとめ

新型FCスタックは、セル流路構造の革新（3Dファインメッシュ流路によるガス拡散性と排水性の向上による均一発電）および電極の革新（プロトン伝導性、ガス拡散性、触媒活性の向上による電気化学反応促進）により、2.4倍の高電流密度化を図ることができた。また、スタック締結構造の機能統合による小型・軽量化により、従来比2倍以上の出力密度3.1 kW/L、2.0kW/kgを達成し、セダンの床下搭載を実現した。さらに、電極の耐久性を従来比3倍に向上およびスタックの耐衝撃性・防水性・防錆など信頼性を確保した。一方、コストは、高価な貴金属使用量削減（触媒Pt量72%低減、表面処理Auレス化）とスタック構造簡素化により、大幅に低減した。

以上、高性能で低コストの新型FCスタック開発により、FCVの商品性アップと普及および水素社会実現に向けた第一歩を踏み出すことができた。

### 参考文献

- (1) 前田正史ほか：X線CTを用いた燃料電池内部の水挙動解析. デンソーテクニカルレビュー. vol. 13, no. 1, 2008, p. 37 - 43
- (2) 濱田成孝ほか：多孔体流路を用いた燃料電池セルの高出力化. 自動車技術会2011年秋季大会学術講演会. 219-20115664, 2011
- (3) 壺阪健二ほか：新型FCV用高性能燃料電池電極の開発. 日本機械学会2015年度年次大会講演論文集. J0560201, 2015
- (4) 戸沼利之ほか：新型FCV用燃料電池スタックの開発. 自動車技術会2015年秋季大会学術講演会講演予稿集. 2015, p. 742 - 745

### 著者



水野 誠司



紺野 周重



壺阪 健二



西海 弘章



窪 英樹



戸沼 利之

# MIRAI のための高圧水素貯蔵システム開発

The High- Pressure Hydrogen Storage System for the Mirai FCV

近藤 政彰 *1 Masaaki Kondo	山下 顕 *2 Akira Yamashita	後藤 荘吾 *2 Sogo Goto
大神 敦幸 *3 Nobuyuki Ogami	小林 朋能 *3 Tomoyoshi Kobayashi	大坪 弘和 *3 Hirokazu Otsubo

## 要旨

FCV（燃料電池自動車）MIRAI 用に開発した高圧水素貯蔵システムについて紹介する。2種類の異なる形状のタンクを新規開発することで、セダン車両に客室空間を損なうことなく貯蔵システムを搭載し、必要水素量を確保した。質量軽減のため、タンクのCFRP（Carbon Fiber Reinforced Plastic）積層および口金設計の工夫により、炭素繊維使用量の低減を図り、世界トップクラスの軽さ（タンク質量効率5.7wt%）を実現した。バルブ、減圧弁、レセプタクル（充填口）、配管に至るまで新規開発を行い、新規に制定された国際圧縮水素自動車燃料装置の認証を取得した。この規格では、タンクを局所的に火災暴露する要件もあるが、衝撃吸収用タンクプロテクタに耐火材を組み合わせることで、体格を増やさず、耐落下性能と耐火性能を両立させた。水素ステーションとの通信規格にも対応し、水素充填時間を3分程度に短縮しながら高い充填効率を実現し、ガソリン車並みの利便性を確保できた。

## Abstract

This article describes the high-pressure hydrogen storage system developed for the Mirai fuel cell vehicle (FCV). This new storage system was designed with two different shaped tanks to hold the necessary quantity of hydrogen without sacrificing interior space in a sedan-type vehicle. As a weight reduction measure, the amount of carbon fiber was reduced by designing tanks with an innovative laminated carbon fiber reinforced plastic (CFRP) structure and bosses, resulting in class-leading lightness (weight effectiveness: 5.7 wt%). The storage system also features newly developed valves, pressure regulator, receptacle (hydrogen inlet), and piping, which enabled the vehicle to acquire certification under the newly established international standards for compressed hydrogen vehicle fuel devices. Since these standards involve exposing the tanks to a localized fire test, both drop and fire resistance requirements were satisfied without increasing the external volume of the tanks by combining the impact energy absorbing tank protector with a fire-resistant material. The storage system is also compatible with standards for communicating between FCVs and hydrogen refueling stations. As a result, a high filling efficiency was achieved while reducing the hydrogen refueling time to approximately 3 minutes, roughly the same level of convenience as a gasoline-powered vehicle.

キーワード 水素貯蔵システム, 高圧水素タンク, CFRP, 炭素繊維, 積層構成, 高圧バルブ, 水素充填

## 1 はじめに

トヨタ自動車では、1992年より燃料電池自動車の開発に着手し、普及に向けたさまざまな開発を行っている。2008年モデルの「トヨタFCHV-adv」では、燃料貯蔵圧力35MPaであった2005年モデルから、燃費向上や貯蔵圧力の70MPa化を行い、実用航続距離500km以上を達成した。今回、セダンパッケージの採用に合わせ、70MPa高

圧水素貯蔵システムを新規開発した。その結果、2008年モデルと比較し、大幅な軽量化と低コスト化を実現した。

## 2 システム構成

図1に、高圧水素タンクの車両搭載図を示す。今回開発した高圧水素タンクは、セダンタイプ車両での床下配置を考慮し、形状を最適化した。これによって、乗員スペースと必要水素量を両立した。

\*1 先進技術開発カンパニー 先進技術統括部

\*2 パワートレーンカンパニー FC製品開発部

\*3 パワートレーンカンパニー FC基盤開発部

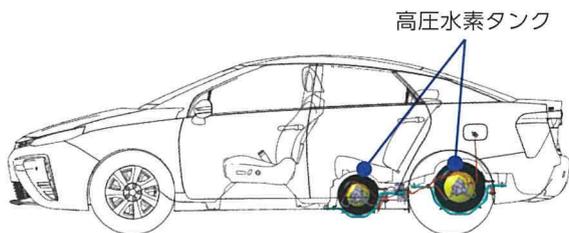


図1 タンク搭載レイアウト

図2に高圧貯蔵システムの基本構成，表1に高圧水素タンクのスペックを示す。異なる形状の2本のタンクから供給される高圧水素は，高圧減圧弁とインジェクターにより2段階で減圧され，燃料電池スタックに供給される。

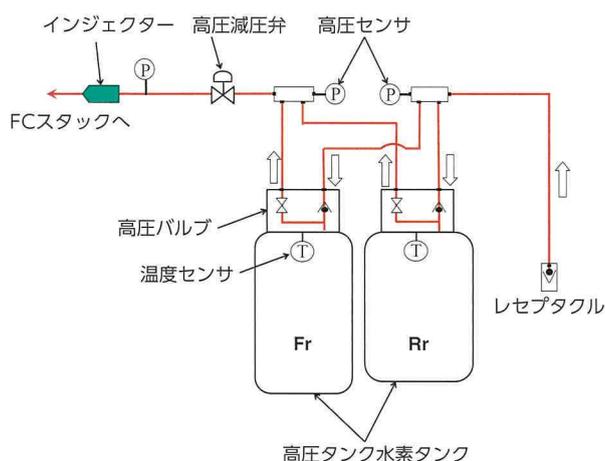


図2 高圧貯蔵システム基本構成

表1 高圧水素タンク主要スペック

公称使用圧力 (MPa)	70
タイプ	4 (樹脂ライナー)
体格 (mm)	FR: φ 350 × L1016 RR: φ 436 × L748
内容積 (L)	FR: 60.0 RR: 62.4
質量 (kg)	FR: 42.8 RR: 44.7 (水素ガスとバルブ含まず)
水素搭載量 (kg)	約 5.0
法規 / 規格適合	KHK S0128, SAE J2579, gtr No.13 欧州法規 (EC No.79, 406)

また，2本のタンクは床下にバンド状のブラケットで固定される (図3)。

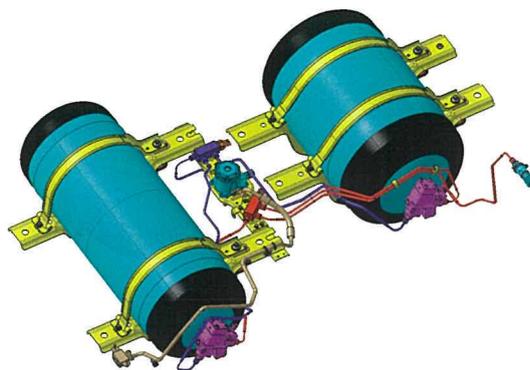


図3 水素貯蔵システム構成

### 3 高圧水素タンク軽量化

#### 3.1 CFRP 積層方法改良

高圧貯蔵システムの質量のなかで多くの割合を占めるのは高圧水素タンクであるため，設計を大幅に見直した。図4に，高圧水素タンクの構成を示す。

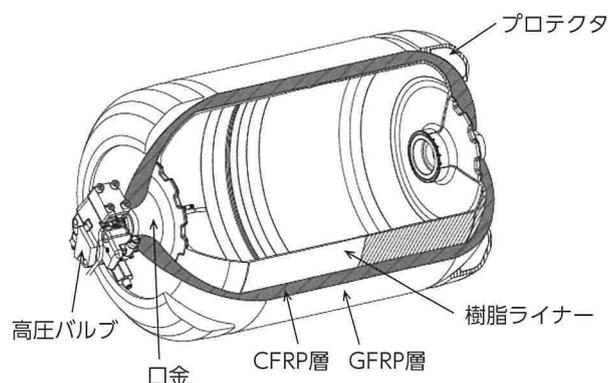


図4 高圧水素タンク構成

高圧水素タンクは，最内層に水素ガスを封入するための樹脂ライナー，その外側に高圧に対する強度を受けもつCFRP (Carbon Fiber Reinforced Plastic) 層，さらに外側に耐衝撃性を確保するGFRP (Glass Fiber Reinforced Plastic) 層，プロテクタからなる。樹脂ライナーの両端には，バルブとの締結のためのアルミ製口金を有している。今回，タンク軽量化のためCFRP積層構成を改良し，使用量を削減した。図5に，高圧タンクの基本的な積層パターンを示す。

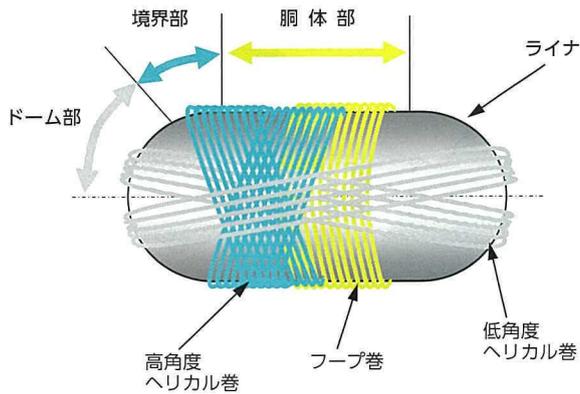


図5 高圧水素タンクの積層パターン

高圧タンクのCFRP積層構成は、次の3種類の巻き方を組み合わせている。胴体部の強度を受けもつフープ巻きと、ドーム部（軸方向）の強度を受けもつ低角度ヘリカル巻き、および、それらの境界部を補強する高角度ヘリカル巻きである。ここで、境界部の補強に必要な高角度ヘリカル巻きは、必然的に胴体部にも巻かれてしまう。高角度ヘリカル巻きは胴体部に約70°の角度をもって巻かれるため、図6に示すように、補強の効率が低下する。

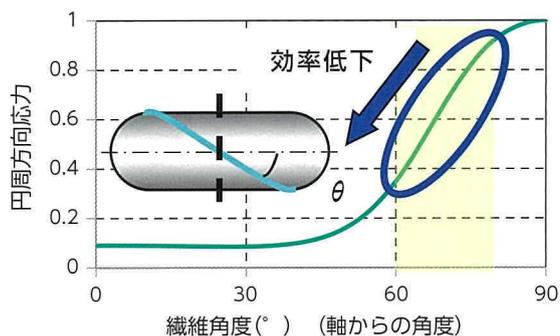


図6 繊維角度と強度効率

今回の開発では、高角度ヘリカル巻が胴部で有効でないことに着目し、高角度ヘリカルを使用することなく境界部の補強を実現する積層方法を開発した。新旧の積層方法の比較を図7に示す。

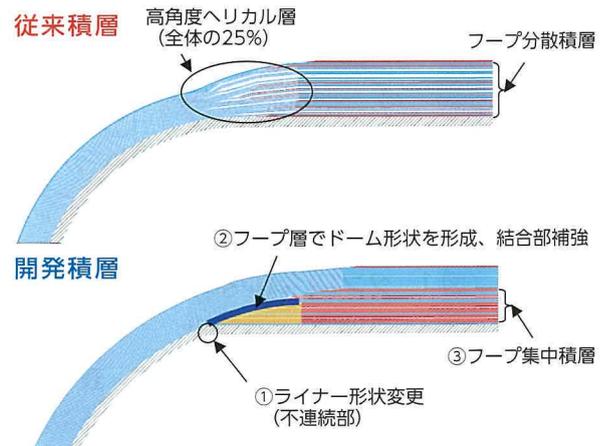


図7 新旧積層方法の比較

従来積層方法に対する具体的な変更は、以下の3点である。

- ① 境界部にフープ巻きを積層できるように、ライナーの断面形状が平坦になるように変更
- ② フープ巻きの端部位置を徐々に後退させ、従来ライナーの形状を形成しながら、境界部を補強
- ③ フープ巻きを内層に集中的に積層

上記の変更により、2つの効果が得られる。一点目は、層数全体の約25%を占めていた高角度ヘリカル巻きを廃止できることである。二点目は、胴部補強の効率が低いフープ巻きを、発生応力が高い内層に集中させることにより、繊維強度の有効活用ができることである。この2つの効果により、従来積層に対して20%のCFRPを削減することができた。

### 3.2 口金最適化

CFRPの使用量を削減するために、口金形状についても最適化を行った。口金は、CFRP開口部に作用する内圧の反力を、フランジの面圧としてCFRPに伝達する。このため、開口部（ $\alpha$ バルブ径）が小さいほど、かつ、フランジ径が大きいほど、CFRPに与える面圧を低減でき、ヘリカル層のCFRP量を削減することができる。図8に、新旧口金形状の違いがCFRP内面での面圧に及ぼす影響について示す。

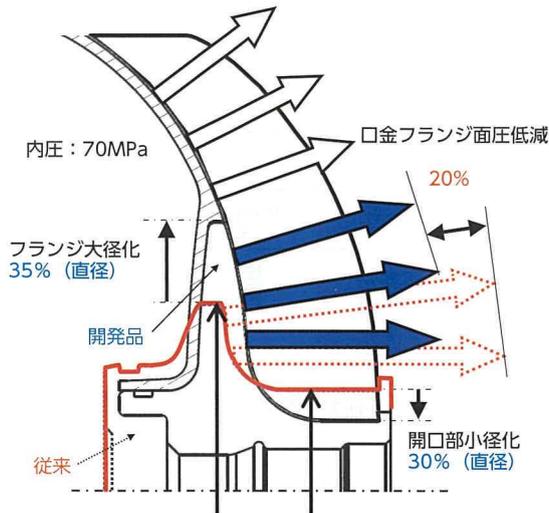


図8 口金部のCFRPに対する面圧

口金形状最適化により、ヘリカル層を約5%削減することができた。

以上のように、積層構成の改良と口金径の適正化により、境界部（高角度ヘリカル）とドーム部（ヘリカル）のCFRP使用量を大幅に削減した。その他の質量低減アイテムと合わせ、従来積層比合計40%削減することができ、タンク本体の質量効率5.7wt%と、世界トップレベル（2015年時点）の水準を達成した。また、図9に従来積層方法品と新積層方法品との断面比較を示す。

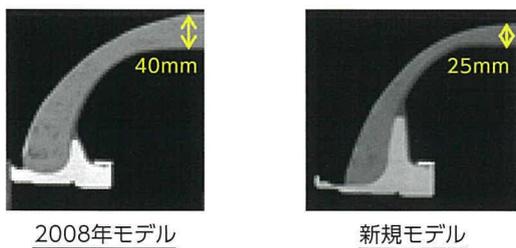


図9 新旧積層方法によるタンク断面比較

## 4 低コスト化／小型化

### 4.1 汎用炭素繊維高強度化

タンク本数を4本から2本に削減しただけではコスト目標に到達しないこともあり、高圧貯蔵システム全般に渡り、材料低コスト化、部品数削減、ガソリン車用ユニットの流用など、さまざまな検討を行った。特に、タンク用炭素繊維については、2008年モデルでは航空機にも使用されている高級グレードを用いていたため、非常に高コストで

あった。そこで、タイプ4タンクに必要なCFRPの特性を考慮した上で、炭素繊維メーカーの協力により、汎用グレード繊維の改良に取り組んだ。この検討の結果、弾性率は従来の汎用グレードに近い一方で、強度を高級グレードに近づけた低コスト炭素繊維を開発した。

### 4.2 高圧バルブ

高圧タンク以外の高圧部品についても、低コスト化／小型化を推進した。高圧部品は、水素脆性を考慮し、水素が触れる部位はアルミ合金やステンレスを用いることが多い。今回の高圧バルブや高圧減圧弁の材質も、2008年モデルと同様に、ボディをアルミ合金、主な構成部品の材質をステンレスとした。そこで構造を見直し、部品数を低減した。図10に、新旧のバルブ構成図を示す。

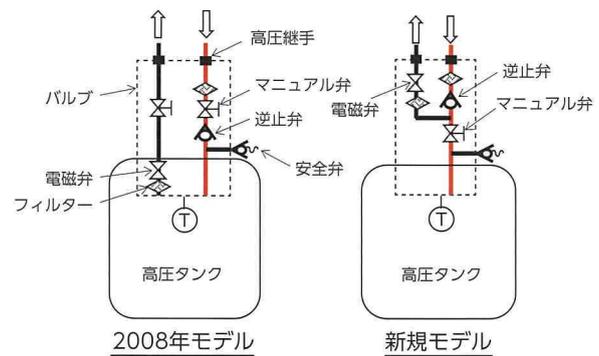


図10 新旧バルブ構成

今回の開発では、バルブ内のガス流路を簡素化し、電磁弁の配置を見直した。それに加え、電磁弁内部構造も改良、小型化した。また、逆止弁などの摺動部位については、耐久性確保のため、2008年モデルではステンレス製スリーブを埋め込んでいたが、部品数削減と小型化のため、省略を検討した。図11に、逆止弁摺動部位の比較を示す。

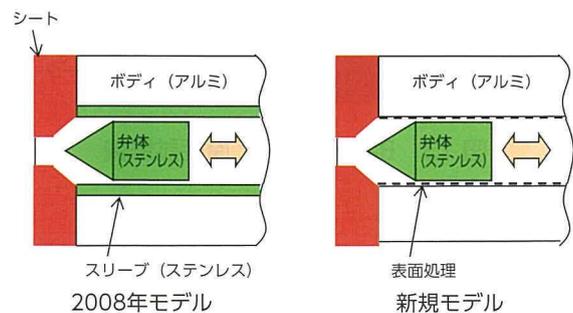


図11 新旧バルブ摺動部

アルミ合金は一般的に硬度が低く、ステンレス材と組み合わせると、摺動時の凝着や異物発生によるシール不良が懸念される。このため、2008年モデルではステンレス材同士を組み合わせ、摩耗、異物の発生を抑制した。それに対し、今回はステンレス製スリーブの代わりに、新たに表面処理の採用を検討した。

図12に、検討に用いたBall-On-Disk 摩耗試験の概要を示す。今回、新規に試験機を製作し、水素中における摩耗試験を可能とした。また、図13に試験機概要を示す。ボール側を弁体と想定し、ステンレス材とする一方で、ディスク側はボディ摺動面を想定し、材質や表面処理を変更した。総摺動距離は、耐久寿命を考慮して決定した。試験の結果、アルミ製ボディにアルマイト表面処理を行うことにより、水素中でも安定した摺動特性が確保できることが分かった。

図14に、ディスク側の材質とアルマイト処理有無による試験中の平均摩擦係数を、図15に、表面摩耗形態を示す。

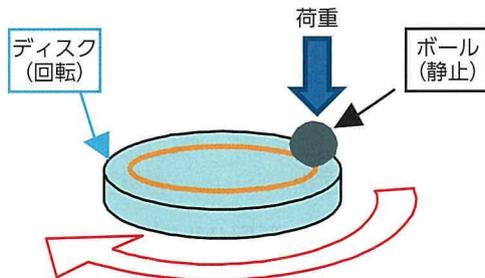


図12 Ball-On-Disk 摩耗試験概要

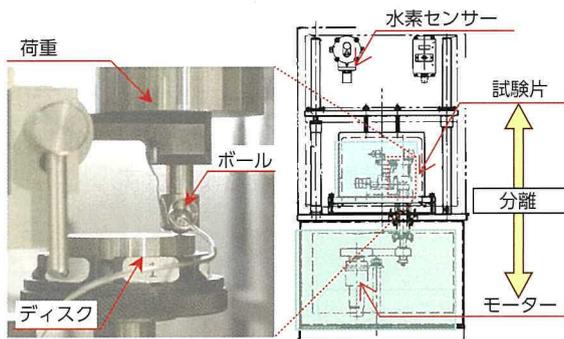


図13 Ball-On-Disk 摩耗試験機

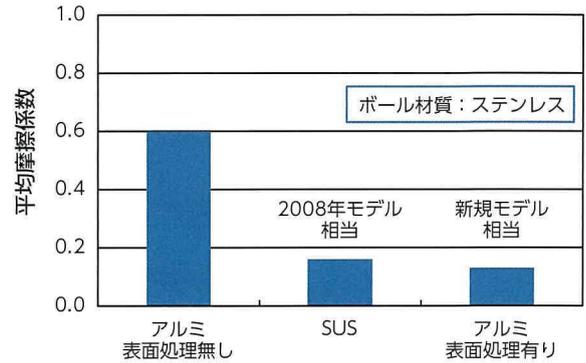


図14 DISK 材質、表面処理と摩擦係数の関係

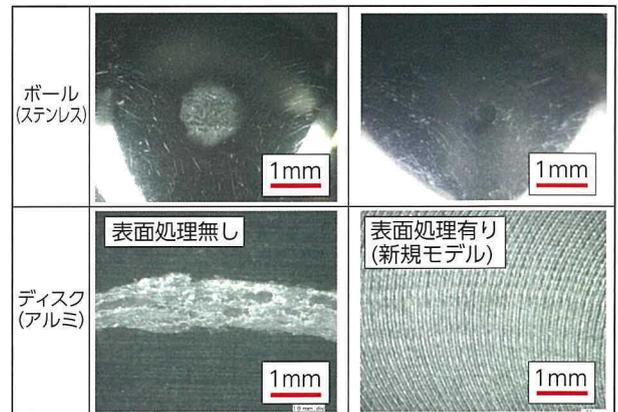


図15 表面処理有無による摺動面の違い

図14, 15より、アルマイト表面処理ありの場合は水素中でも安定した摺動特性を有していることが分かる。以上の取り組みの結果、バルブの質量は約25%減、部品数は35%減となり、小型化とコスト低減を達成した。図16に、新旧バルブの外観を示す。



2008年モデル

新規モデル

図16 高圧バルブ比較

### 4.3 高圧減圧弁

高圧減圧弁は、シール部品の見直しなどによる低コスト化を検討した。高圧減圧弁の下流に配置されるインジェクターの制御において、高圧減圧弁の調圧値の過渡特性は重要である。過渡的な調圧値のばらつきが大きいと、インジェクター噴射量ばらつきも大きくなり、燃費に悪影響を及ぼす。図 17 に、減圧弁の構造概略を示す。

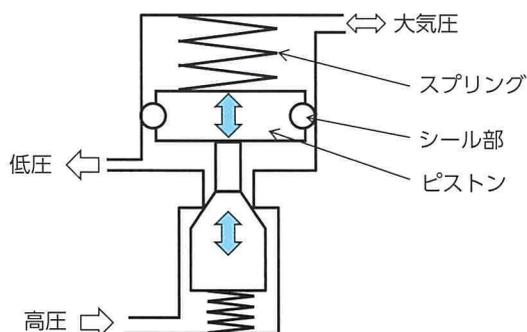


図 17 高圧減圧弁構造概略

減圧弁は、高圧側弁体、低圧側ピストン、スプリングなどから構成される。燃料供給の際、下流のインジェクターの動作と同期し、減圧弁の過渡流量も変化するため、ピストン、弁体などが細かくストロークする。この際、ピストン摺動部の摩擦係数が大きく変化するなど不安定であると、調圧特性がばらつく要因となる。今回、ピストン摺動シール部の材質を安価なものに変更した上で、シール材の形状を工夫し、安定した摺動特性を確保した。加えて、ピストン形状も最適化した。これらの結果、2008年モデルと比較し、調圧特性も改良された上、低コスト化を実現した。図 18 に、流量を変化させた際の調圧値の変化、ヒステリシスを示す。

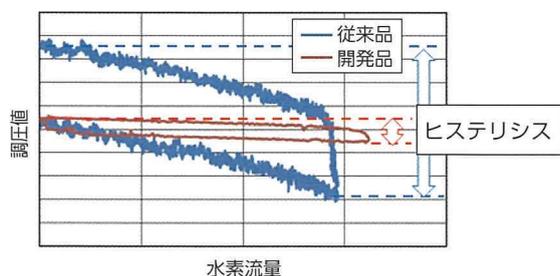


図 18 調圧特性比較

### 4.4 高圧継手

高圧継手もシール構造を変更し、低コスト化を実現した。2008年モデルはOリングシール方式を採用していたが、連続的にガスを消費した際に、高圧継手部は $-50^{\circ}\text{C}$ 程度まで下がるため、高コストである特殊材を使用していた。今回、新たにメタルシール式の継手を採用し、部品数を削減した。図 19 に、高圧継手の構造を示す。

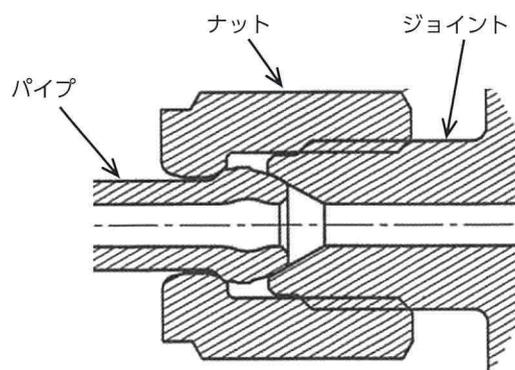


図 19 高圧継手断面図

パイプ、ジョイントともに材質はステンレスであるが、シール性能を考慮し、各々の材質について最適な硬度を規定した。これにより、ガスケットがなくとも信頼性が確保でき、低コスト化および組み付け時間短縮が可能となった。

### 4.5 高圧センサ

高圧センサは、既存のエンジン用高圧センサを高圧水素中で使用できるように改良した。図 20 に、高圧センサの断面図を示す。

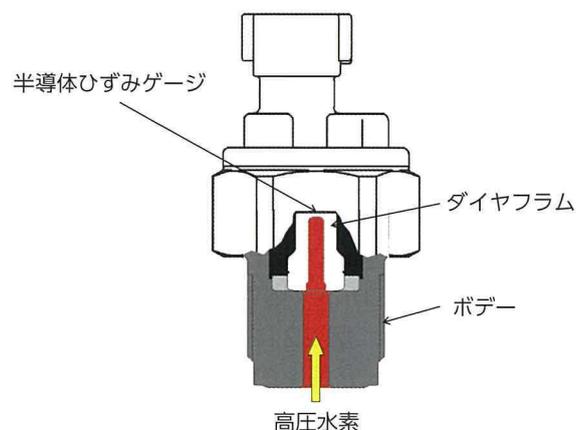


図 20 高圧センサ

高圧センサは、高圧加圧時におけるダイヤフラムの微小変形を、半導体ひずみゲージで検出する構造である。本センサを長時間、水中で使用すると、ダイヤフラム中に微量の水素が固溶し、ダイヤフラムが変形するため、センサ精度が悪化することが分かった。図 21 に、水素固溶によるダイヤフラムの膨張と変形量を測定した結果を示す。

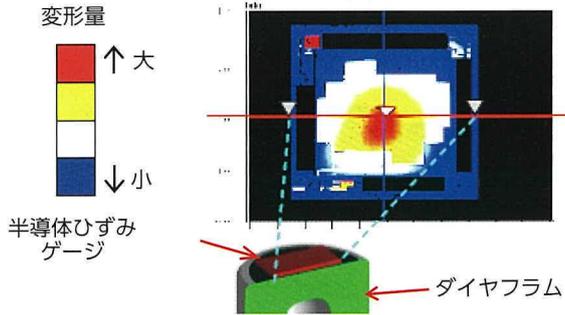


図 21 水素固溶によるダイヤフラムの変形

この影響に対する対策として、ダイヤフラムの材質変更や形状変更など、複数の案を検討し、ダイヤフラム内面に水素透過抑制膜を追加することとした。この水素透過抑制膜は、従来から存在する表面処理技術を流用することで、コストアップを最小限に抑えた。この結果、ダイヤフラムへの水素の固溶量は 1 割程度まで削減し、長期間、高圧水素中で使用しても精度が悪化しないことが確認できた。

## 5 充填性能向上

2008 年当時は、プレクール対応の水素ステーションの多くが充填ガス温度  $-20^{\circ}\text{C}$  であったため、充填時間に 10 分程度を要した。また、ステーションと車両との通信規格に未対応であったため、充填率は最大でも 90% 程度であった。昨今、市場導入された SAE J2601 に準拠した水素ステーションは  $-40^{\circ}\text{C}$  プレクール対応であり、これにより充填時間はガソリン車相当レベルまで短縮された。また、今回、通信プロトコルに対応させることにより、充填率を向上させた。図 22 に通信システム構成を、図 23 に充填時間、充填率の比較 (SAE 標準条件、トヨタ社内測定値) を示す。

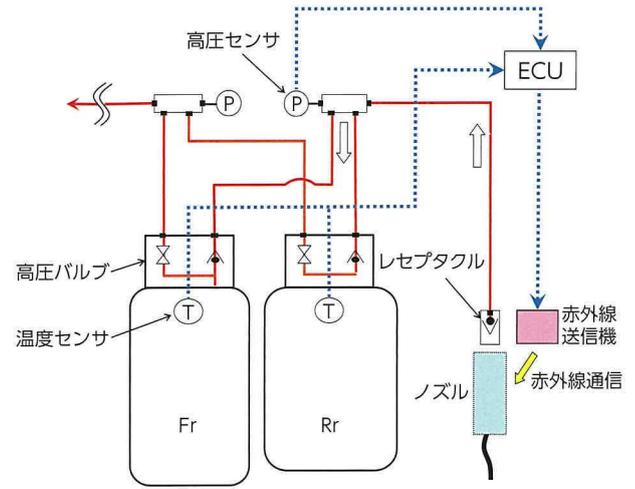


図 22 通信システム構成

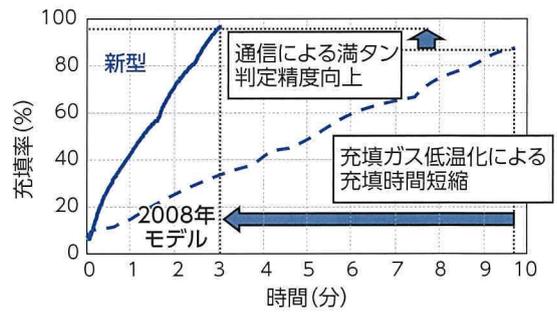


図 23 水素充填時間と充填率

また、少しでも充填率を向上させるため、通信時の満タン判定精度改良を検討した。複数の異形タンクを備えたシステムでは、一般的に、充填口からタンクへの圧力損失差やタンク毎の放熱性の違いにより、充填時の温度上昇の度合いが異なる。加えて、これまでの検討では、タンク内部でも充填時に温度分布が生じることが分かっている。ガス燃料は液体燃料と異なり、一般的に、充填中の圧力を温度で補正することにより、満タンを判定している。このため、上述したタンク間やタンク内の温度差が大きい場合、なるべく平均温度に近い温度を検出することが重要となる。今回、タンク間温度差については、各タンクへの充填配管経路を調整し、なるべく温度差が小さくなるようにした。一方、タンク内部の温度差については、充填ガスの噴き出し方向や温度センサの位置を調整し、平均温度との誤差を小さくするようにした。これにより、95%以上の充填率を達成した。図 24 に、タンク内での温度センサ位置やガス吹き出し方向が充填率に与える影響について、実験結果を示す。

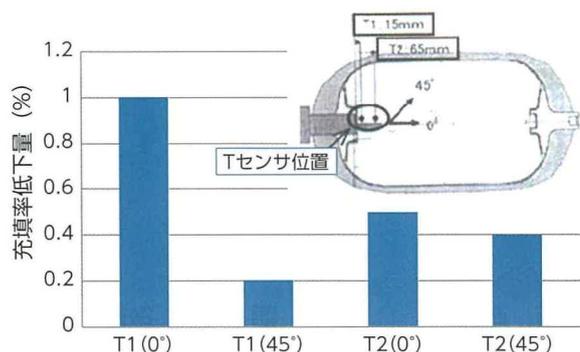


図 24 吹き出し方向、温度センサ位置と充填率の関係

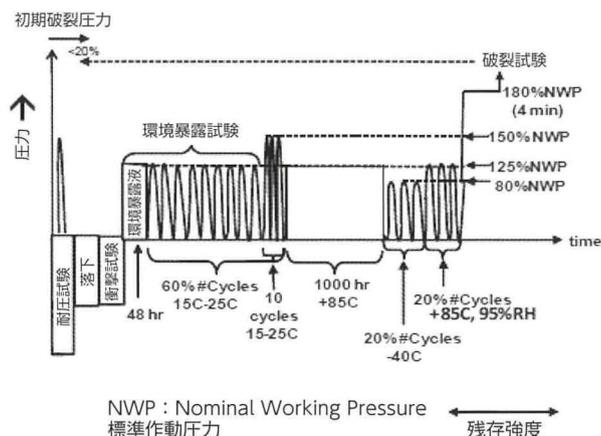


図 25 水素ガス圧力サイクル試験の手順

## 6 認証対応

今回の開発にあたり、水素貯蔵システムの構成部品は、新たに制定された gtr (Global Technical Regulation) および欧州法規 [EC No 79/2009], [EC No 406/2010] の認証取得を目標とした。従来の高圧水素タンクは、国内の圧縮水素自動車燃料装置用容器の技術基準として、2013 年に制定された [KHK S0128] の型式認証を取得しているが、新型 FCV 用高圧水素タンクおよび高圧バルブは、より厳格化された gtr の試験条件をクリアし、日本で初めてこの認証を取得している。従来の試験条件からの主な変更点は、①圧力サイクル負荷に加えて、化学的、物理的衝撃（落下）を連続して評価する点、②水素ガスを用いた圧力サイクル試験の環境温度条件に関して、室温だけでなく極端温度も評価する点、③火炎暴露試験において、従来の容器全面だけではなく、熱作動式過圧防止安全装置から離れた片側のみを炙るパターン（局所火炎）を追加した点、の3点である。①について、評価パターンを図 25 に、また、③について、試験時の写真を図 26 に示す。

なお、②については、車両のカットボデーを用いて、対象部品以外も含めた水素貯蔵システム全体で実施した。図 27 に、その際の様子を示す。



図 26 火炎暴露試験  
(左側：局所火炎 右側：全面火炎)



図 27 水素ガス圧力サイクル試験外観

また、前述した局所火炎暴露試験への対応として、従来の衝撃吸収用タンクプロテクタに耐火材を組み合わせることによって、体格を増加させることなく耐落下性能と新しい耐火要求性能を確保している。図 28 に、プロテクタの構造を示す。

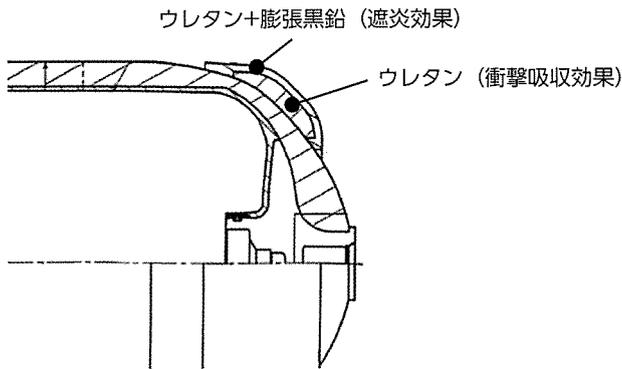


図 28 新型タンクプロテクタ

## 7 おわりに

MIRAI に搭載した高圧水素貯蔵システムは、タンク、バルブ、減圧弁などの構成部品を新規に開発することで、客室空間を損なうことなく、必要水素量を搭載可能にした。タンクの CFRP 積層改良などの軽量化により、2008 年モデルと比較し、貯蔵システム全体としての質量効率率は約 15% 向上した。また、低コストかつ高強度の新規炭素繊維の採用や、各高圧部品における簡素化と部品流用により、大幅なコスト低減を実現した。充填性能については、ステーションと車両との通信規格 SAE J2601 および J2799 に対応することにより、3 分台の充填時間と高い充填率を実現し、利便性を向上させた。あわせて、国際水素自動車燃料装置用容器の認証取得とともに、欧州認証「EC No 79/2009」も取得した。

今後、本格的な普及期を目指して、さらなる軽量小型化の技術開発を進め、次世代への進化を継続していきたい。

### ■参考文献

- (1) 山下顕ほか：FCHV 用高圧水素バルブの開発。自動車技術会学術講演会前刷集。No. 24-10, 2010, P. 13 - 16
- (2) 水野基弘ほか：FCHV 用高圧水素タンク。自動車技術会学術講演会前刷集。No. 84-05, 2005, P. 13 - 16
- (3) 水野秀昭ほか：70MPa 高圧水素タンク搭載燃料電池自動車の開発。自動車技術。Vol. 62, No. 11, 2008, P. 47 - 52

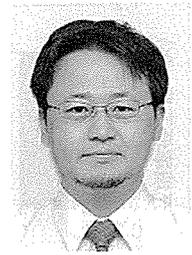
### ■著者



近藤 政彰



山下 顕



後藤 荘吾



大神 敦幸



小林 朋能



大坪 弘和

## 新型燃料電池バスの FC システム開発

Development of Fuel Cell System for New FC Bus

小川 朋宏\*<sup>1</sup> 馬屋原 健司\*<sup>1</sup> 井漕 好博\*<sup>1</sup>  
Tomohiro Ogawa Kenji Umayahara Yoshihiro Ikogi

### 要旨

燃料電池乗用車 MIRAI に続き開発した、新型燃料電池バス SORA の燃料電池 (FC) システムについて紹介する。バスは、乗用車に比べて、モータ出力が高い運転頻度が多いため、乗用車のシステムのままでは FC の電位変動幅が大きく、耐久目標時間走行後、大幅な出力低下が発生する課題があった。SORA では、バッテリーの出力比率を大きくし、FC の電位変動幅を抑制するシステム・制御により、耐久性と動力性能の両立を実現した。また、バッテリー SOC が低い場合など、バッテリーから出力を供給できない場合は、一時的に FC の電位変動幅が大きい動作点で動作し、出力を確保することで動力性能を担保した。上記制御を含む耐久試験にて耐久性を確認し、耐久性と動力性能が両立できたことを確認した。

### Abstract

This article describes the fuel cell (FC) system adopted by the Sora, a new FC route bus developed after the Mirai FCV. Since an FC route bus has a greater frequency of high motor output than a conventional FCV, use of the FCV system in an FC bus results in larger electric potential fluctuations and causes a substantial reduction in power after a lifetime durability test. Therefore, for the Sora, the battery output rate was increased and a system and control adopted that reduces the electric potential fluctuations of the FC. This configuration and control enables the new FC bus to satisfy requirements for both durability and dynamic performance. Additionally, if sufficient power cannot be provided from the batteries due to a low state of charge (SOC) or the like, the system ensures the required dynamic performance by temporarily operating the FC at an operation point with a large potential fluctuation range to boost output. The durability of the FC system in the Sora, including this control, was verified in durability tests. These tests confirmed that the FC system achieved both the required durability and dynamic performance.

キーワード 燃料電池, FC システム, HV システム, 電位変動, 出力低下, 耐久性, 電力分配

## 1 まえがき

近年、地球温暖化、大気汚染といった環境問題が深刻化するなか、CO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>などのエミッションを排出しない機構、また、特定の国・地域に偏在せず、多様なエネルギー源から製造できる水素燃料を使用した燃料電池(以下FC)の注目が高まっている。トヨタ自動車では、FCの普及拡大、水素社会の実現に向け、燃料電池乗用車(MIRAI)に続き、新型燃料電池バス(SORA)を開発した。

本稿では、FCバスの課題であった動力性能と耐久性能の両立を実現したFCシステム構成と、その制御について述べる。

## 2 車両概要

### 2.1 車両主要諸元

SORAの概観を写真1に、国土交通大臣認定を取得した2002年モデル<sup>(1)</sup>と、今回の車両諸元を、表1に示す。



写真1 新型燃料電池バス(SORA)

\*<sup>1</sup> パワートレーンカンパニー FC 製品開発部

SORA では、2002 年モデルより優れた動力性能と、大幅な耐久性向上を達成することができた。また、大容量外部給電機能を持ち、災害時に避難所で約 4.5 日分（使用電力量を約 50kWh/日 で試算）相当の電力供給が可能となっている。

表 1 車両諸元

		SORA	2002 年モデル FC バス
車両	全長 / 全幅 / 全高 (mm)	10,525/2,490/3,350	10,515/2,490/3,360
	定員 (人)	79	60
	外部給電システム	最大出力 9kW 供給電力量 235kWh	なし
FC スタック	種類	個体高分子形	
	出力 (kW)	114 × 2	90 × 2
モータ	最高出力 (kW)	113 × 2	80 × 2
	最大トルク (N・m)	335 × 2	260 × 2
駆動用 バッテリー	種類	ニッケル水素	
高圧水素 タンク	本数 (本)	10	5
	公称使用圧力 (MPa)	70	35

## 2.2 FC システム

図 1 に、SORA と MIRAI のシステム構成を示す。必要な動力性能と耐久性を確保するため、乗用車で開発したトヨタフューエルセルシステム (TFCS) に二次バッテリーを 1 基追加したシステムを、2 システム搭載した。これらは電気的に分離され、独立したシステム動作をしており、駆動モータはギアを介して機械的に接続されている。各々の駆動モータは同じ出力となるよう電力分配の設計をし、燃料電池、補機部品の耐久性向上に寄与している。

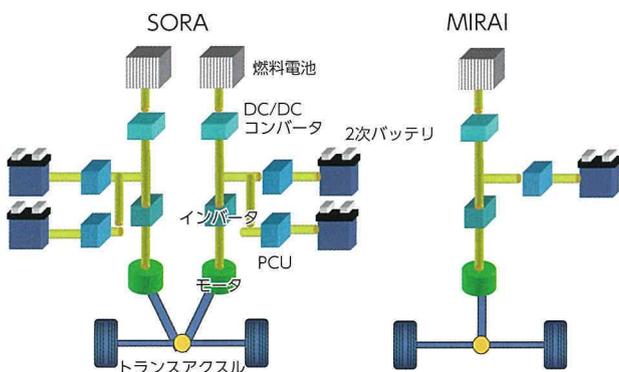


図 1 SORA と MIRAI のシステム構成

## 3 FC 耐久性向上制御

### 3.1 概況

SORA では、2002 年モデルに比べて大幅に FC スタックの耐久性を向上させるため、スタックの出力低下を引き起こす白金触媒溶出・大粒径化を抑制するシステム・制御の開発を実施した。

### 3.2 スタック出力低下メカニズムとバスの課題

FC の触媒である白金は、電位が高い場合に溶出し、電位が低い場合に析出する特性がある。また、電位が低い場合に白金表面の酸化被膜が除去され、直後に電位が高くなると白金が溶出しやすい特性がある (2)(3)。

電位変動を繰り返し、白金の溶出・析出を繰り返すことで白金粒子径が増大し、有効触媒表面積が低下する (図 2)。有効触媒表面積が低下することで反応抵抗が増大し、出力が低下する (図 3)。

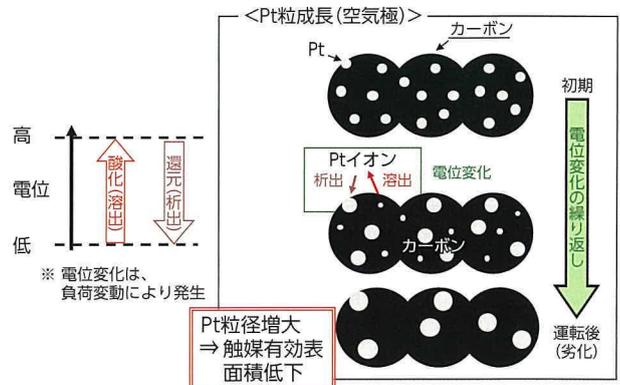


図 2 出力低下メカニズム図

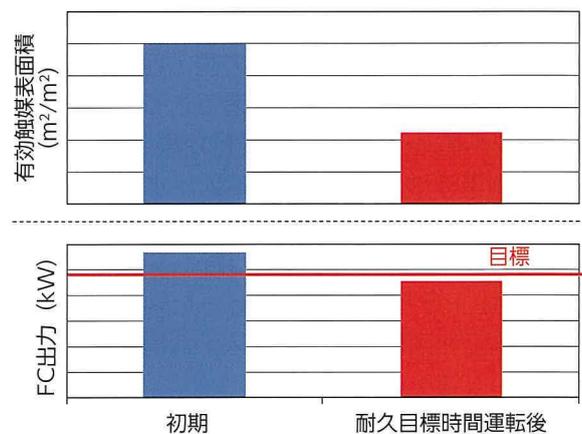


図 3 耐久目標時間走行後の有効触媒表面積と燃料電池出力

SORAに、MIRAIのシステムとその制御を流用すると、図3のように、耐久目標時間走行後の有効触媒表面積は非常に小さくなり、大幅な出力低下に至る。

図4は、乗用車と路線バスの標準的な走行パターンでのモータ出力の頻度を表したグラフである。バスは乗用車に比べて、高出力の頻度が高く、バスの出力範囲を賅うには、電圧変動幅つまり前述の電位変動幅を大きく使う必要があり(図5)、大幅な出力低下を招いてしまう。

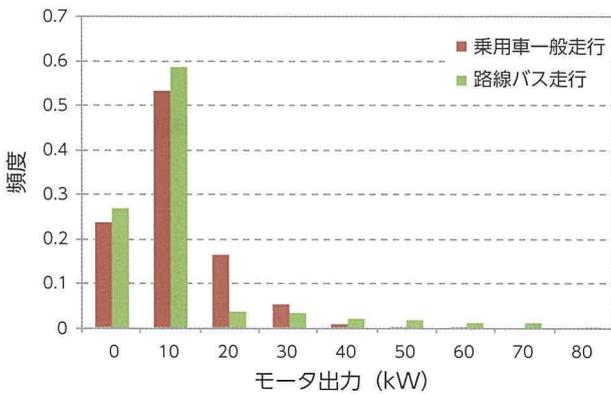


図4 乗用車と路線バスのモータ出力頻度

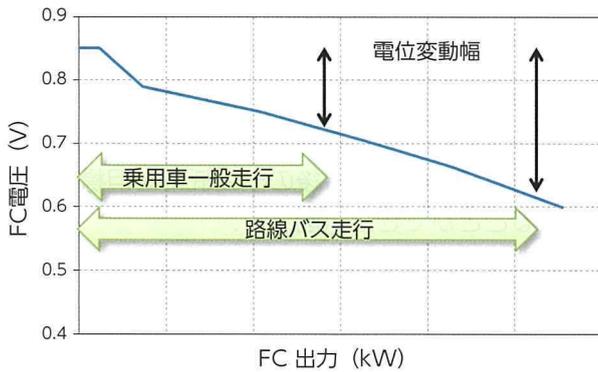


図5 乗用車と路線バスの電位変動幅

### 3.3 電位変動幅を少なくするシステム・制御設計

FCは、図6のようなPV特性をもっているため、電位変動幅を抑えるには、スタックの負荷変動幅を抑える必要がある。最低発電量を維持しながら、負荷変動幅を抑えるため、SORAでは下限電圧(Vfmin)を、耐久後の出力目標を満足するよう、MIRAIに比べて高く設計した。

モータの出力( $P_{mot}$ )は、FC出力( $P_{fc}$ )、二次バッテリー出力( $P_{bat}$ )から供給し、以下の出力収支で成立する(補機消費電力を省略)。

$$P_{mot} = P_{fc} + P_{bat} \quad \dots\dots\dots (1)$$

Vfminから決まるFCの最大出力( $P_{fcmax}$ )以下でモータ出力を賅えるよう、以下のようにシステム設計を実施する必要がある。

$$P_{bat} \geq P_{mot} - P_{fcmax} \quad \dots\dots\dots (2)$$

図7にMIRAI, SORAのモータ最大出力時のFC、二次バッテリーの出力内訳を示す。 $P_{fcmax}$ (SORA)で、モータ最大出力を得るためには、乗用車に比べて、より二次バッテリー出力が必要となり、既存ユニットを流用し、二次バッテリーを2基搭載することで、モータ最大出力を供給可能とした。

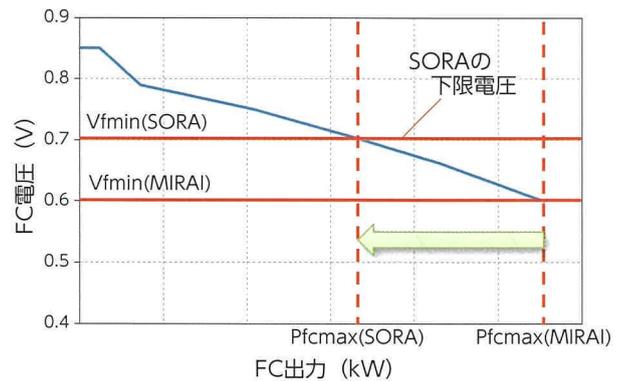


図6 SORAとMIRAIの最大出力

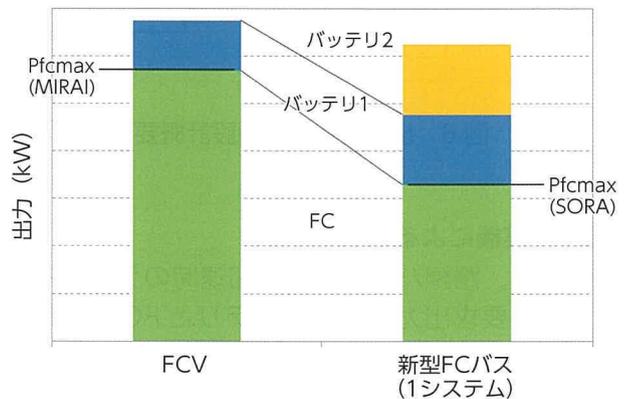


図7 モータ最大出力時の出力内訳

### 3.4 二次バッテリーにより出力確保したシステムの課題

モータ駆動に必要な電力を二次バッテリーから供給することで、FCの負荷変動幅を小さくすることを実現しているが、連続登坂などで二次バッテリーのSOCが低くなる場合や、二次バッテリーの温度が高い場合など、二次バッテリーから電力供給できない状

態では動力性能が不足する。

二次バッテリーの出力が得られない場合は、一時的に下限電圧を下げ、FCで出力を賄うことで、動力性能を確保した。図8に設計概要を示す。車両の要求出力が上昇していき、FC出力を上昇させるが、FCの下限電圧に達すると、二次バッテリーから出力をさせる(図8①)。車両要求出力が増加し、維持されると、FCの下限電圧の出力と二次バッテリーの出力で賄われ、バッテリーSOCが低下する(図8②)。SOCの下限に達すると、耐久性向上のための電圧の下限を一時的に低く設定し、FC出力を増加させ、二次バッテリーの出力を抑制し(図8③)、車両の要求出力を満たす。

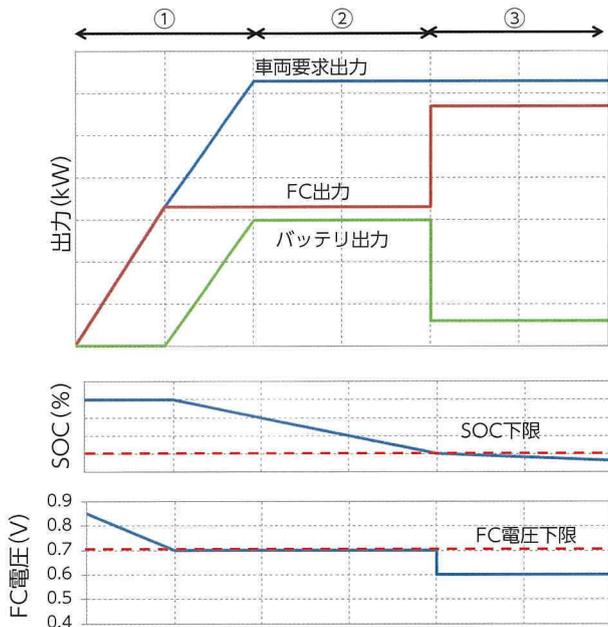


図8 出力確保手法の設計概要

### 3.5 実機による検証

図9に、路線バス走行中の加速時のデータを示す。車両要求出力を二次バッテリーとFCから供給し、耐久性向上のための下限電圧を守る動作点制御を実現することができた。

また、路線バス走行時の二次バッテリー温度とSOCのグラフを図10に示す。路線バス走行では、耐久性向上のための下限電圧を守る制御動作が可能な二次バッテリー温度とバッテリーSOCの範囲内で走行することができ、FCの耐久性向上と動力性能の両立を図ることができた。

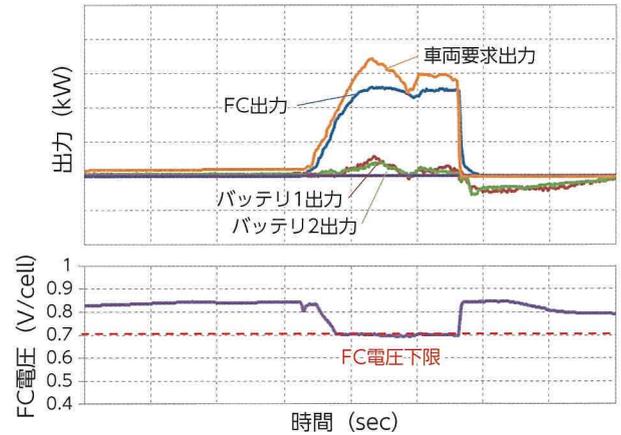


図9 加速時のFC電圧挙動検証結果

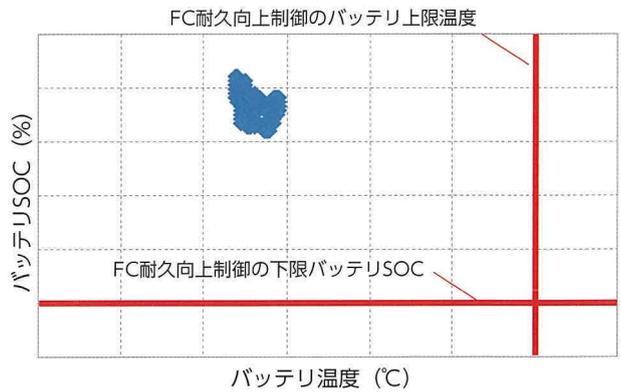


図10 路線バス走行時のバッテリーSOCと温度

上記のように、電位変動幅が少ない動作点での制御を実現したことで、有効触媒表面積の低下を抑制でき、耐久目標時間走行後の出力低下を目標性能以下にすることができた(図11)。

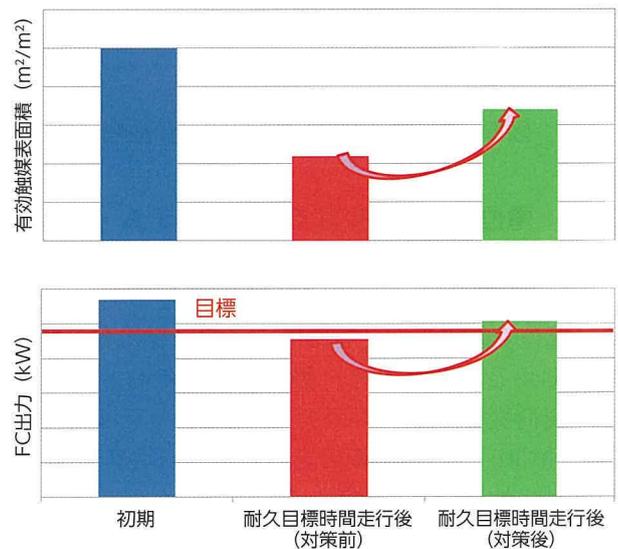


図11 FC耐久性向上制御の効果検証結果

また、連続登坂時のデータを図12に示す。連続登坂により、二次電池のSOCが低下すると、FCの下限電圧を一時的に下げ、FCの電力供給を増加させることで、モータの要求パワーを不足なく出力し、車速維持が可能であることを確認した。

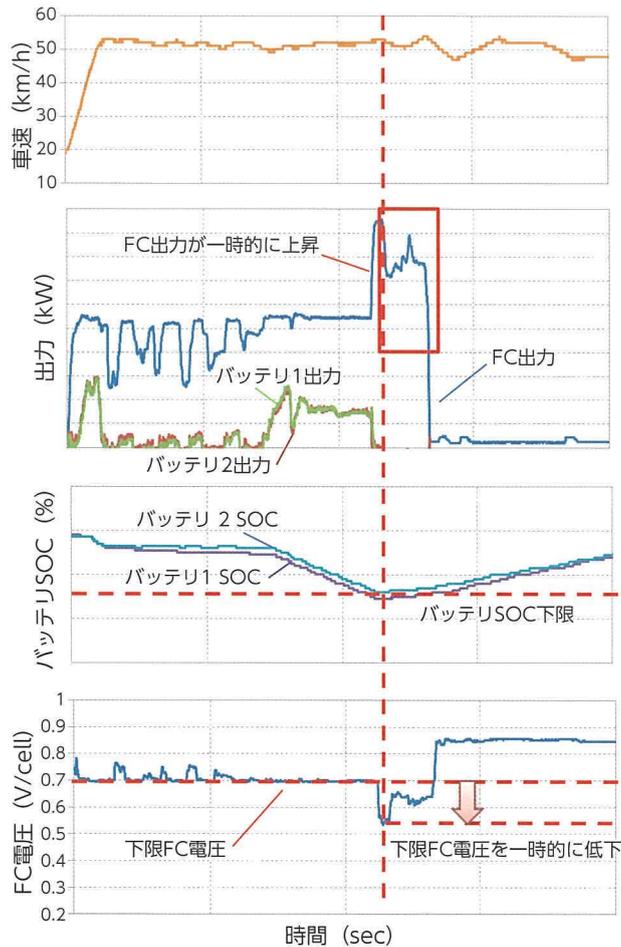


図12 連続登坂性能の検証結果

#### 4 まとめ

路線バスは乗用車に比べて、モータ出力が高い運転頻度が多いため、乗用車のシステムのままではFCの電位変動幅が大きく、耐久目標時間走行後、大幅な出力低下が発生する課題があった。SORAでは、バッテリーの出力比率を大きくし、FCの電位変動幅を抑制するシステム・制御により、耐久性と動力性能の両立を実現した。

本開発実施にあたり、日野自動車株式会社、株式会社デンソーに多大なご協力をいただいた。謹んで感謝する。

#### 参考文献

- (1) 長沼良明ほか：燃料電池ハイブリッドバスの開発. 自動車技術会春季学術講演会. 2003, 136
- (2) Robert M. Darlinga, et al.: Kinetic Model of Platinum Dissolution in PEMFCs. Journal of The Electrochemical Society. Vol. 150, 2003, A1523-1527
- (3) Robert M. Darling et al.: Mathematical Model of Platinum Movement in PEM Fuel Cells. Journal of The Electrochemical Society. Vol. 152, 2005, A242-247

本論文は、下記発表済み論文の転載（一部変更）である。

小川朋宏ほか：新型燃料電池バスのFCシステム開発. 自動車技術会秋季大会学術講演会講演予稿集, 2018, p. 74

#### 著者



小川 朋宏

馬屋原 健司

井漕 好博

# 生産性向上を狙ったライン内情報活用

Utilization of Production Line Information to Improve Productivity

渡邊 祐貴 \*1  
Yuki Watanabe

林 佑樹 \*1  
Yuki Hayashi

藤村 皓亮 \*1  
Hiroaki Fujimura

## 要旨

自動車業界が変革期を迎えているなか、低リソースでのエンジン生産ラインのスムーズな立上げを目指してラインを構築しているが、計画通りの稼働を達成するまでに時間がかかっている。今回、エンジン加工ライン内情報を活用し、可動阻害要因が刃具交換作業・設備故障と刃具異常によることと特定した。また、それぞれの要因に対し、刃具交換作業効率化・設備故障兆候管理・刃具異常メカニズム解明のシステムを構築し、活用した結果について示す。

## Abstract

As the automotive industry faces a period of transformation, it is desirable to start up engine production lines smoothly and using a minimum of resources. However, it takes time for these lines to reach production targets. Utilizing information from engine machining lines, the causes of these production delays were identified as cutting tool replacement work, equipment malfunctions, and cutting tool abnormalities. This article outlines how these causes were identified and addressed by increasing the efficiency of cutting tool replacement work, managing signs of possible equipment malfunction, and establishing a system to identify the mechanism of cutting tool abnormalities. It also describes the results of these initiatives.

キーワード 生産ライン, IoT, 稼働阻害要因, 波形監視, AI, ニューラルネットワーク

## 1 背景・目的

今日、自動車業界は変革期を迎えており、電動化・自動運転・コネクテッドといった技術革新が加速し、リソースも重点的に投入されている。一方で、これらの技術革新が進んでもエンジンは必要となるため、低リソースでのライン立上げが要求されている。しかし、目標の期間では規定のライン稼働にまで達せず、多くの時間がかかっている。そこで今回、素早い生産阻害要因の特定・対策実施を狙い、各設備からワーク状態・異常詳細・電流波形等、さまざまな情報を収集できる環境を構築した。本論文では、これらの情報を用い、要因特定・対策実施を狙ったシステムを作成し、活用した結果を示す。

## 2 構築したシステムと導入結果

### 2.1 生産状況の見える化（改善版稼働モニタ）

まず、阻害要因把握のために稼働モニタの機能を向上し、生産状況の見える化を行った。従来の稼働モニタは、「運転中」「異常」「刃具交換停止」といった状態を設備ごとに時系列で表示していたが、停止要因把握には不十分であった。そこで、停止要因を明確にするため、異常詳細や設備内ワーク有無等の情報を取得できる環境を構築した（図1）。これにより、ワーク未搬入による停止なのか、未搬出による停止なのかが分かり、ライン停止原因となる設備を特定できる。また、異常ごとの停止時間や、刃具交換・品質チェックの累計時間を表示する機能も追加した。本モニタを活用し、停止要因を分析した結果、「刃具交換作業の遅れ」「設備異常」「加工不良」によることが分かり（図2）、各要因への対策を次節から示す。

\*1 パワートレーンカンパニー エンジン生技部

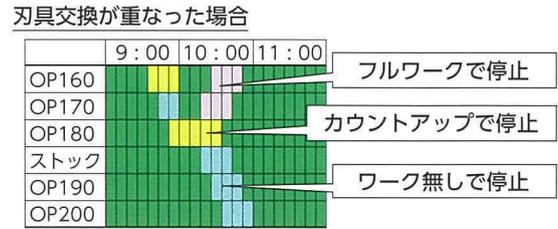
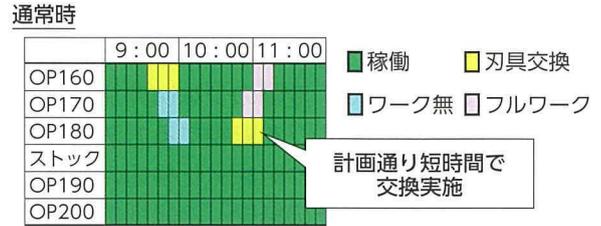
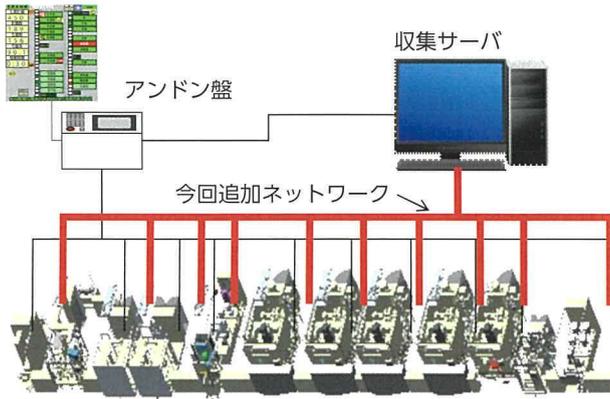
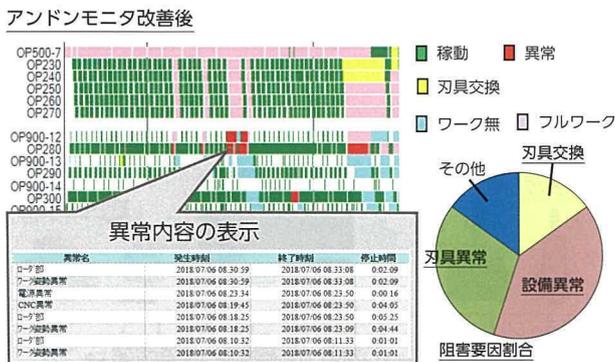


図3 刃具交換重なり時の設備停止時間増加



発生時刻 = (寿命 - 現在値) × サイクルタイム

	寿命	現在値	残り	サイクルタイム (C/T)	発生時刻 (残り) × (C/T)
刃具A	100	70	30	1min	30分後
刃具B	150	60	90	1min	90分後
刃具C	200	185	15	2min	30分後

重なり

図4 刃具交換時刻計算方法

## 2.2 刃具交換作業効率化 (刃具交換時刻予報システム)

「刃具交換作業の遅れ」は、刃具交換作業タイミングの重複により発生している。工程計画時、刃具交換等の作業工数を見積り、配置人数を算出しているが、作業が重なると同時に対応できず、その結果、停止時間が増加することが分かった (図3)。そこで、刃具交換作業の重なり的事前把握を狙い、発生時刻を予測する「刃具交換時刻予報システム」を開発した。刃具交換作業は規定生産数ごとに発生するため、全設備から規定数と現在数を取得し、作業発生時刻を予測する (図4)。刃具ごとに計算された時刻を一覧で表示する画面を作成し、随時確認できるようにした (図5)。これにより、発生時刻を事前に把握でき、準備ができる。本システム導入により、刃具交換作業を1直あたり80分低減することができた。

また、副次的な効果として、発生タイミングが休み時間になる作業の前出し実施により、休み時間中も稼働できるようになり、ライン稼働時間も増加した。



## 2.3 設備異常の低減 (設備状態監視モニタ)

「設備異常」による停止低減のために、長時間停止の異常内容を分類した結果、主軸・送り軸の焼付による停止時間が長く、次いで、治具不良・モータ不良等による停止時間が長いことが分かった (図6)。設備異常は、一度発生すると設備の分解・修理・復元・精度確認を実施しなければならず、長時間の停止となり、ライン稼働を妨げるため、異常兆候の把握が必要である。従来より、異常兆候の早期検出に取り組んできたものの、測定できるデータを不定期で収集しており、未然防止につながらなかった。そこで、今回、常時データを収集・監視することで異常兆候を検知する、「設備状態監視モニタ」を構築した。

まず、直接データを収集できるモータ等の電動部に関し、焼付き・損傷を監視するため、主軸トル

クの監視を実施した。加工時のトルクは、刃具の摩耗程度・ワークの硬度等により変化するため傾向を把握しにくい。そこで、変動の少ない非加工時である、モータ空転時のトルクを監視する方法を採用した。また、モータ水入りや絶縁劣化検知のため、絶縁抵抗値も監視した。その結果、絶縁抵抗値低下からモータ水入りを検知し、非稼動時に交換することでモータ故障によるライン停止を防止できた(図7)。

一方で、治具・クランプ等のメカ部は、直接データを収集することが困難である。そこで、代替データを監視することで状態を把握した。治具状態の監視のため、品質チェックの測定結果を活用し、面位置測定データから、治具傾きを検出できた。

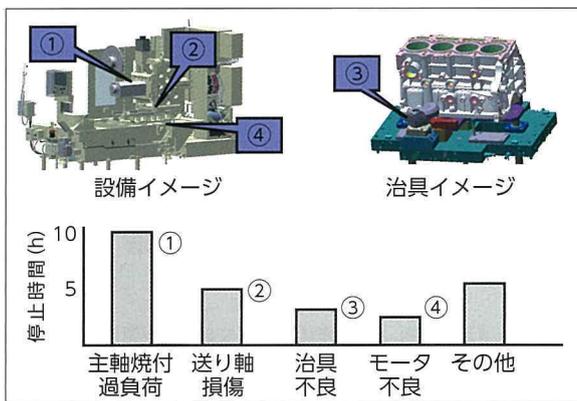


図6 設備異常毎ライン停止時間実績

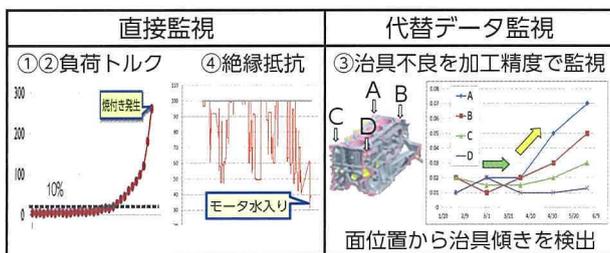


図7 異常兆候監視方法と結果

## 2.4 刃具異常の低減(刃具情報紐付けシステム)

刃具の破損等の「加工不良」は、突発的に生産現場で発生している。その都度、データ収集個所を決めて収集を開始するが、再現せずに、残されている不良ワークと破損刃具から原因を推定し、対策している。しかし、推定された原因が真因ではなく、不具合が慢性化するケースが多く発生する。これらを引き起こす加工不良のメカニズムを特定するためには、生産ラインや設備情報に加え、刃具の情報も必

要であり、今回の情報収集に、刃先・セッティングの情報を収集できる環境を追加した(図8)。使用後の刃具を再研磨する集合研磨室(集研)にある刃先検査装置での情報や、刃具を設備に取り付けるホルダと刃具のセッティング精度取得のため、プリセッタの情報を収集し、必要な情報を一元的に収集できる環境を構築した。さらに、不具合発生時、膨大なデータから対象データを素早く取り出すため、刃具・ホルダ・ワークに個体IDを付与し、それぞれのIDにデータを紐付けて保存した(図9)。この「刃具情報紐付けシステム」を活用し、慢性不具合であったクランクシャフトの油穴あけドリル破損での取組み例を示す(図10)。

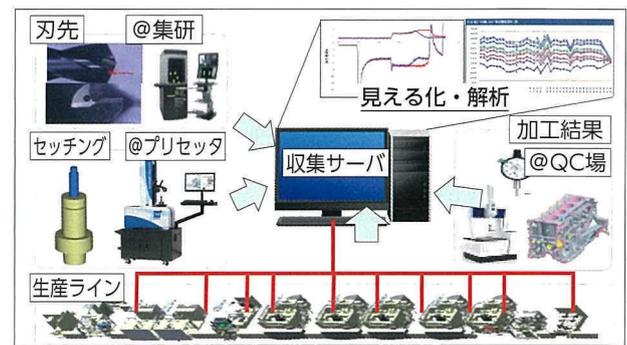


図8 刃具情報収集環境

	集研	プリセッタ	設備	QC場
紐付けイメージ	刃物ID	刃物ID ホルダID	ホルダID 設備ID(機番) ワークID	ワークID
取得情報	・先端振れ ・先端径・全長 ・先端角・2番角 ・シンニング磨れ・すかし角 ・チゼル残し幅 等	・セッティング後振れ 全長	・加工実績 刃具カウンタ 電流波形	・位置度 ・同軸度 ・面位置 等製品精度

図9 刃具情報紐付けイメージ

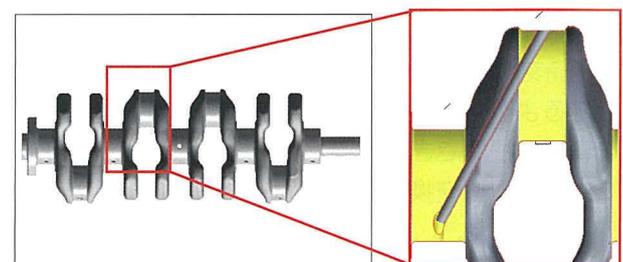


図10 クランクシャフト油穴

クランクシャフトの油穴ドリルは、3か月で20本程度折れており、稼動に大きな影響を与えている。折れモードは2つに分かれ、刃具交換直後1本目に折れる「初品折れモード」がおおよそ60%、寿命途中で折れる「寿命途中折れモード」がおおよそ40%発生していることが分かっている。今回、この2つのモードそれぞれに取組みを実施した。

(1) 初品折れモード：

初品折れに対し、折れの有無と刃先の紐付けデータから折れ時の特徴を調査した結果、再研後の刃先画像から、シンニング形状に違いがあることを突き止めた(図11)。シンニング部が大きすぎると刃具剛性が低下し、折れに繋がる。シンニング形状と折れの相関を確認するため、実証評価を実施し、閾値を見極めた結果、シンニング深さ管理で折れを防止できることを確認した。従来、再研磨時はシンニング深さを管理していなかったが、実証結果を集研メンバーと共有したところ、シンニング深さの管理方法と研磨方法が考案された(図12)。この方法を、再研磨後の管理項目に加えてからは、初品折れは発生していない(図13)。

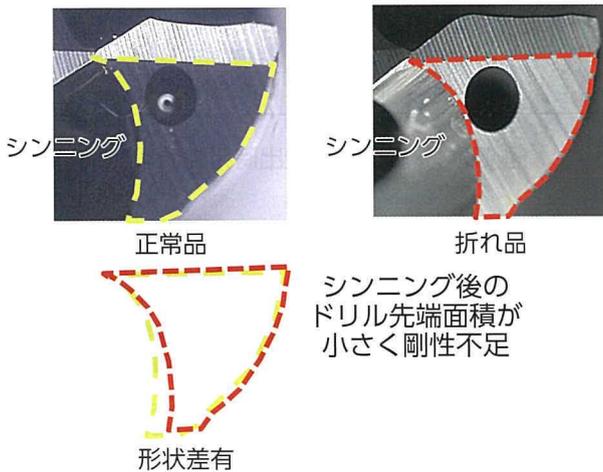


図11 初品折れモード刃具の刃先観察結果

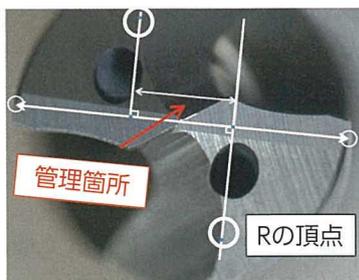


図12 シンニング深さ管理方法



図13 シンニング入り量管理実施結果

(2) 寿命途中折れモード

寿命途中折れ時の主軸トルクを正常時と比較したところ、折れ発生前から主軸トルクが上昇していることが分かった(図14)。このトルク上昇の発生タイミングを調査したところ、折れ発生の約25サイクル前であることが分かった(図15)。この上昇が破損の兆候である可能性もあり、上昇時に発生している現象把握のために、トルク波形の監視システムを構築した。

トルク上昇の瞬間を捉える手段が必要であり、今回、トルク上昇は一見すると明確なため、閾値での判定をまず実施した。しかし、正常時の波形も一定ではないことが分かり、単純な閾値では判定できなかったため(図16)、今回、機械学習を用いて波形判定を実施した。機械学習手法については、学習サンプルが多数必要なものの、波形の特徴量を抽出することなく波形自体を判定できる、ニューラルネットを採用した。2週間ごとに全加工サイクルを学習し、正常波形モデルを作成、そのモデルと各加工の波形の偏差を毎サイクル算出することで、異常をリアルタイムに検出する監視システムを構築した。

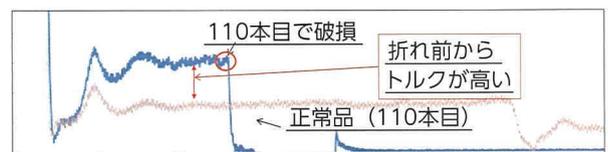


図14 破損品・正常品の主軸トルク比較

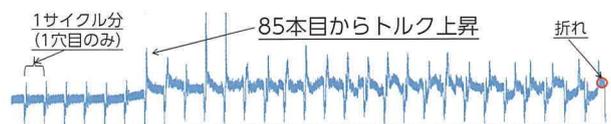


図15 主軸トルク変化タイミング

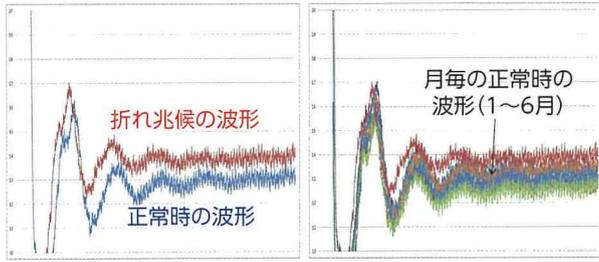


図 16 トルク上昇時波形・正常時波形バラツキ

ニューラルネットを活用した監視を実施した結果、トルク上昇を検知できた。また、検出時にドリルの刃先を確認したところ、マージン部に肩欠けが見られた(図 17)。以降、合計 7 例の検知があり、いずれもマージン部肩欠けによるものであった(図 18)。このような肩欠けは刃具折れを引き起こすものであり、このトルク上昇の検知システムは、刃具折れの兆候を検知できたと言える。

次に、マージン部に肩欠けが見られた刃具に関し、再研磨後、設備取り付け前の刃先写真から、肩欠けの原因を集研メンバーと調査した。結果、7 例の内 1 例において、再研磨時、切れ刃部に実施している手作業ホーニングが、マージン部にまでかかっていることが分かった(図 19)。これが肩欠けを引き起こしている可能性があるため、再研磨時、ホーニング作業後に、目視にてマージン部にホーニングがかかっていないことをチェックしている。現在、他の 6 件についても継続調査中である。

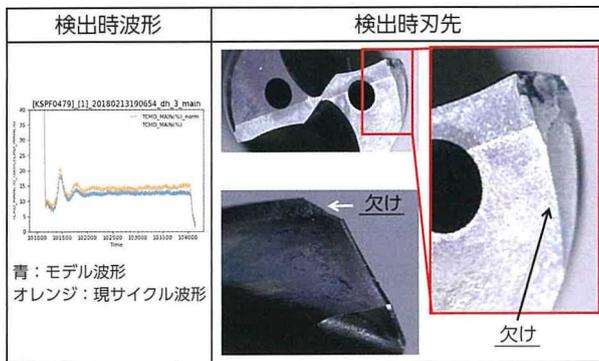


図 17 トルク上昇検出時波形と刃先

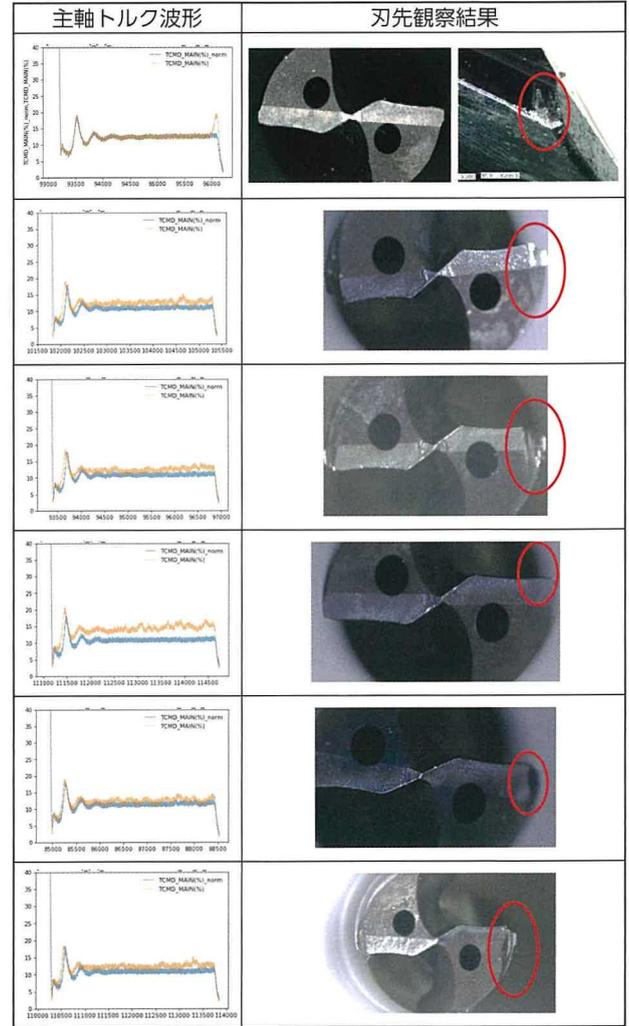


図 18 トルク上昇検出時刃先観察結果

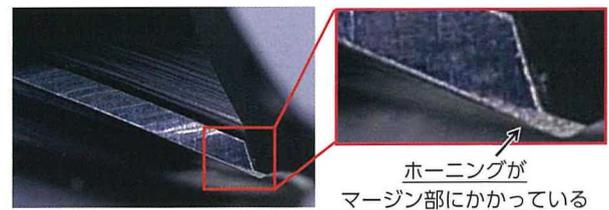


図 19 肩欠け刃具の再研時調査結果

本システムを活用し、クランクシャフト油穴あけ工程について、トルク上昇を検知し、原因の特定を進めてきたが、トルク上昇時に刃具を交換した結果、刃具折れに至ることはなくなった。この結果より、トルク上昇を検知するまで刃具寿命を延長するトライを実施したところ、肩欠けせずに、現状寿命の 4 倍加工できた。また、摩耗量を考慮しても、再研磨時の取り代を増加させることなく、寿命を 2 倍に延長できることが分かった(図 20)。

本工程は、折れが頻発していたため寿命を短縮されていたが、肩欠けが対策できれば大幅な寿命延長が狙えることが分かり、現在、引き続き取組み中である。また、別工程でも同様に、刃具異常のメカニズム解明・対策実施も進めている。

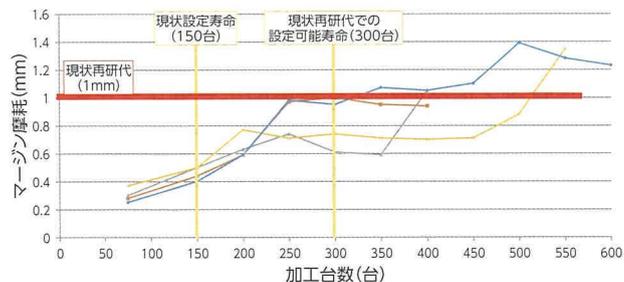


図 20 寿命延長トライ結果

■ 著者



渡邊 祐貴

林 佑樹

藤村 皓亮

### 3 本システムの展開

今回の取組みから、ラインの生産性阻害要因は「刃具交換作業の遅れ」「設備異常」「加工不良」であることが分かり、今回作成したシステム「改善版稼動モニタ」「刃具交換時刻予報システム」「設備状態監視モニタ」「刃具情報紐付けシステム」がそれぞれ有効であることを示した。

本システムは、今後展開されるラインに標準で展開し、グローバルでの生産性向上に活用していく(図 21)。

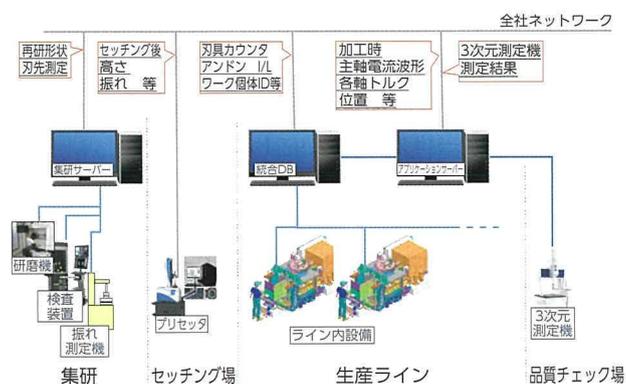


図 21 標準展開システム図イメージ

論文  
解説

# 人工知能を活用したエンジン起動時振動ばらつき要因解析

Factor Analysis of Engine Start Vibration Variations Using Artificial Intelligence

下出 健人 \*1  
Kento Shimode

石崎 啓祐 \*1  
Keisuke Ishizaki

駒田 匡史 \*1  
Masashi Komada

## 要旨

エンジン起動時振動のばらつきの要因解析では、振動理論に基づく現象解析や多変量解析を進めてきたが、強制力に関係する ECU (エンジンコントロールユニット) の制御値は膨大で、限界があった。そこで、多変量の複雑な関係を再現できる機械学習に着目し、因子の寄与度を定量化できる決定木を適用した。さらに、解析モデルを用いて要因解析の妥当性を検証した。

## Abstract

Factor analysis of engine start vibration variations has been carried out by multivariate analysis or by analyzing phenomena based on vibration theory. However, with engine control unit (ECU) values related to excitation forces expanding massively, these methods have reached their useful limits. Therefore, this research focused on machine learning, which is capable of reproducing the complex relationship between multiple variables, and applied a decision tree that quantifies the contribution ratio of each factor. Subsequently, the validity of factor analysis using the developed model was verified.

キーワード エンジン起動時振動, 機械学習, ランダムフォレスト, ばらつき要因解析

## 1 まえがき

トヨタ自動車は、電動車の開発・展開を軸とした、2030年までの電動車普及に向けた取り組みを公表した。2030年までに、グローバル販売台数における電動車を550万台以上に増加させる計画であり、そのなかでもHV(ハイブリッド車)やPHV(プラグインハイブリッド車)に対して、モータとエンジンを協調させる技術のさらなる進化が必要である。本論文では、モータとエンジンを協調させて、エンジンの起動と停止を行う際に発生するエンジン起動停止時振動に関して、そのばらつきの要因を解析する技術を取り上げる。

これまでに、エンジンの起動停止時振動の目標レベルを達成させるため、強制力であるエンジンの筒内圧の低減技術、エンジン懸架系の感度低減技術が開発されてきた。一方で、同一車両でも起動時振動のレベルにばらつきがあり、その最大値が乗員へストレスを与えることがある。ばらつき低減対策として、エンジン起動時の初期クランク角を制御し、エンジン筒内圧のばらつきを抑えてきた。しかし、初期クランク角が一定でもばらつきが発生することがあり、初期クランク角以外の要因の特定が必要である。

従来は、振動理論に基づく現象解析や多変量解析を用いてきたが、因子の数を絞り込めない場合や、因子間の多重共線性が存在する場合、解析が非常に困難となる。そこで、多変量の複雑な関係性を再現できる人工知能の一種である機械学習を適用して、エンジン起動時振動の要因解析を行った。その際、機械学習のなかでも、因子の寄与度を定量化できる手法を適用した。また、過渡振動を機械学習で解析する際、振動波形を特徴量化して入力することで、計算負荷の低減を図った。さらに、解析モデルを用いて抽出した要因の影響を確認し、人工知能による要因解析の妥当性を明らかにした。

## 2 エンジン起動時振動のメカニズムと従来技術

図1に、HVユニットの概要を示す<sup>(1)</sup>。エンジン起動時には、MG1(Motor Generator 1)が駆動トルクによりエンジン回転数を上昇させ、規定のエンジン回転数になると点火する。エンジン起動時振動は、MG1による駆動開始時から発生し、MG1の駆動トルクやシリンダ内の空気の圧縮膨張反力、点火時の燃焼圧によって生じるエンジントルク変動を強制力として増大し、エンジン回転数の上昇に従って減衰していく過渡的な現象である(図2)。

\*1 先進技術開発カンパニー 先進車両技術開発部

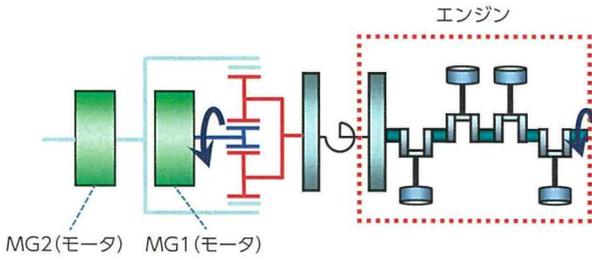


図1 HVユニットの概要

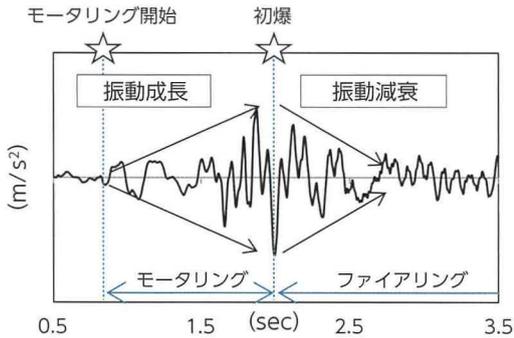


図2 エンジン起動時のフロア振動

エンジン起動時振動は図3のように、強制力であるエンジントルク変動やモータの駆動トルクが、エンジンマウントを経由する伝達経路と、トランスミッション、ドライブシャフト、サスペンションを経由する伝達経路を介して、ボデーへと伝わることで発生する<sup>(2)</sup>。

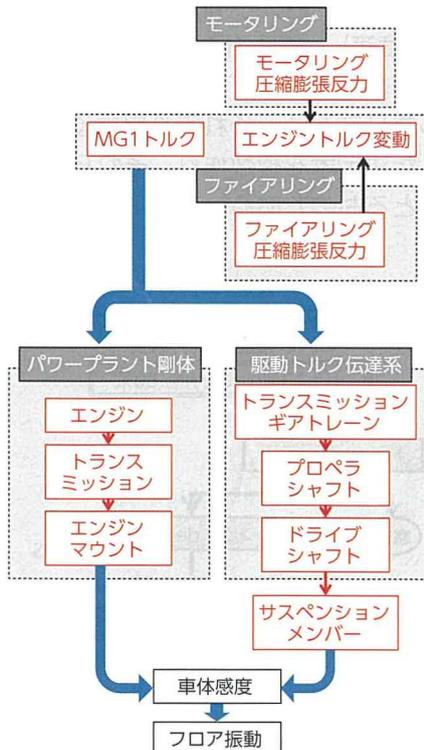


図3 エンジン起動時振動の伝達経路

従来行われてきたエンジン起動時振動のばらつき対策に初期クランク角の制御がある<sup>(3)</sup>。この対策は、図3における強制力のうち、MG1によるモータリング時の空気圧縮膨張反力のばらつきを抑える。空気の圧縮膨張反力は、エンジン起動時の初期クランク角と関係があるため、エンジン停止時にクランク角の停止位置をある範囲内に制御することで、エンジン起動時振動のばらつきを抑制することができる。

### 3 エンジン起動時振動のばらつき要因

エンジン起動時振動のばらつき要因は、モータの駆動トルクやエンジンの筒内圧の大きさのばらつき、モータの駆動開始やエンジンの点火のタイミングのばらつき、ギア等のガタのばらつきが考えられる。これらをまとめると、図4に示すように、Bの制御出力（強制力の大きさ・タイミング、ハードの状態）とCの不確定要因（ギア等のガタ、燃焼のばらつき）に分けられる。本研究の対象はばらつきの要因解析であり、異なるケースで計測されたデータは同じものとみなすことができない。また、エンジン起動時振動は過渡現象であり、時系列での因子同士の関係性が重要であるため、要因と考えられるデータを同時に計測する必要がある。しかし、Bの制御出力とCの不確定要因の物理量のなかには、計測技術がないものや、計測器の取り付けに時間がかかるものがある。一方で、Bの制御出力を決定するのは、AのECU（エンジンコントロールユニット）の指令値であるため、ECUの指令値を解析することで、制御出力に関する要因を抽出することが可能である。そこで、本研究では、ECU指令値を含むECUのRAM（Random Access Memory）値を解析し、ばらつき要因を抽出する。ここで、ECUのRAM値とは、ECUの制御に用いられる状態観測値や制御指令値のことを意味している。ECUのRAM値からは、ギア等のガタや燃焼のばらつきを解析することはできないが、強制力の大きさやタイミング、ハードの状態のばらつきに関する因子を網羅することができる。

論文解説

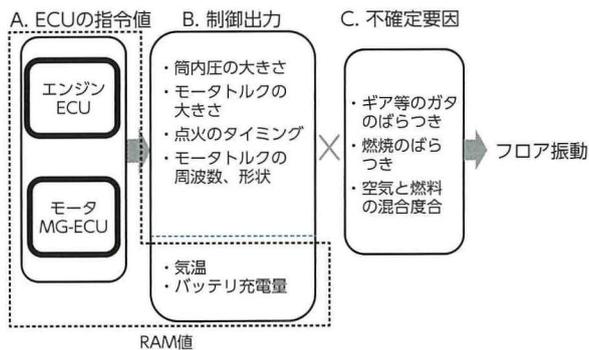


図4 エンジン起動時振動のばらつき要因

図5に、HVのエンジンとモータのRAM値の数を示す。RAM値の数は、エンジンのECUで約30,000個、モータのECUで約1,000個ある。RAM値が増えると、振動理論等の原理に基づく解析では、一つ一つのRAM値の振動への影響を定式化することには限界がある。また、多変量解析（線形回帰手法、主成分分析）は、RAM値が増えて高次元となると相互相関が高まって要因が抽出できなくなる。

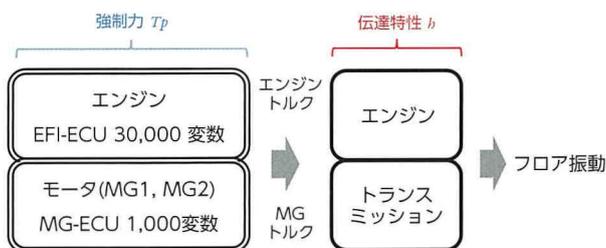


図5 ハイブリッドシステムのECU制御変数の数

## 4 機械学習による起動時振動ばらつきの要因解析

### 4.1 機械学習手法の選択

本研究では、ECUのRAM値を解析するため、多重共線性の強いデータの相互作用を再現できる機械学習手法を適用する。機械学習には、教師あり学習と教師なし学習がある(4)。教師あり学習は、ユーザが入力データと望ましい出力（教師）のペア群より、入力から望ましい出力を生成する関数（モデル）を作成する。一方、教師なし学習は入力データだけが与えられ、出力データは与えられない。本研究では、エンジン起動時振動の指標を教師とするため、教師あり学習となる。

図6は、教師あり学習の手法を、表現能力の高さ

と、モデルの出力に寄与する入力の説明のしやすさの二軸で整理したものである。表現能力が高いモデルは、より複雑な学習・分類が可能となる。教師あり学習では、モデルの内部パラメータ数が多いほど表現能力が高くなるが、モデルが複雑になるほど、モデルの出力に寄与する入力を説明することが難しくなる。本研究で扱うモデルは、振動のばらつきに寄与するRAM値を解析するため、分類結果に寄与した入力を判別できなくてはならない。そのため、入力変数の寄与度の定量化が容易な手法のうち、表現能力が高いランダムフォレストと呼ばれる手法を用いる(5)。ランダムフォレストは、決定木という木構造を利用したアルゴリズムと、多数決型アルゴリズムを組み合わせた手法である。決定木は、入力変数と閾値の大小判定を繰り返すことで分類を行う。

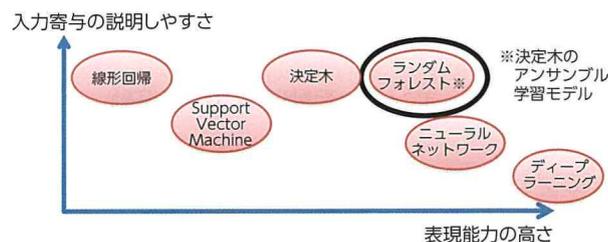


図6 機械学習の手法

図7の例では、気温と湿度という2つの入力変数から、大小判定に従って本日の天気が寒いか否かを分類している。各大小判定で用いられる入力変数（気温、湿度等）と閾値（何度、何パーセント等）は、分類に最適なものをモデルが学習して決める。多数決型アルゴリズムは、それぞれ異なる学習データから生成した決定木を複数作り、それらの分類結果の多数決をとるものである。

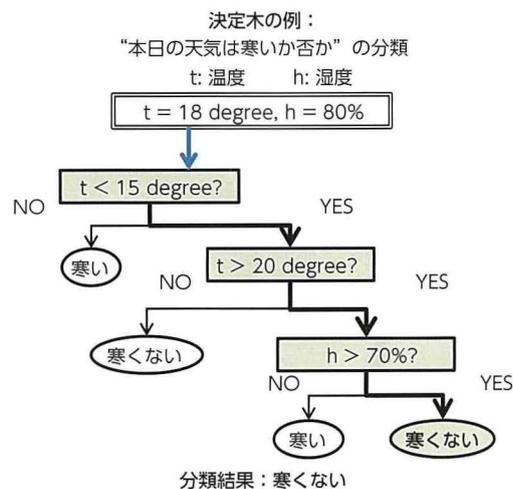


図7 決定木の概要

図8は、本研究で扱う分類モデルの概要である。このモデルは、ある計測ケースにおけるX種類のRAM値を入力した際に、その計測ケースにおける振動指標(vibration index)を出力するものである。モデルは、図7で示した決定木をN本使用し、各決定木は、最大M個のRAM値と閾値の大小判定により構成される。各決定木は、入力されたX種類のRAM値より、大小判定に基づいて振動指標を分類する。例えば、図8の決定木1は、上から順に大小判定を繰り返し、振動指標は7.5であると分類している。同様にして、決定木2から決定木Nは、それぞれ振動指標の分類結果を出力し、最終的にそれらの分類結果を多数決して、モデル全体としての振動指標の分類結果を出力する。

各RAM値の振動指標の分類への寄与度、すなわち振動のばらつきへの寄与度は、図8の複数の決定木の大小判定において、各RAM値が出現した回数に基づいて算出する。

N本の決定木における各大小判定で用いられるRAM値と閾値は、決定木単体の場合と同様に、分類に最適なものをモデルが学習して決める。一方で、「各決定木における大小判定の最大数M」と「多数決を行う木構造の数N」は、あらかじめ設定する必要がある。

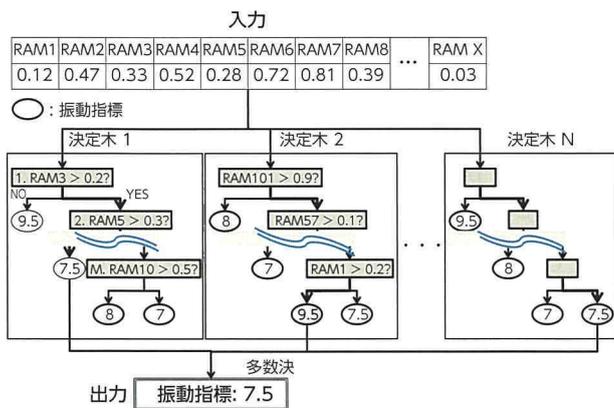


図8 本研究の分類モデルの概要

#### 4.2 各決定木における大小判定の最大数と多数決を行う木構造の数について

分類の要因となった入力を説明しやすくするため、モデルが複雑になりすぎないように、「各決定木における大小判定の最大数M」と「多数決を行う木構造の数N」を制限する必要がある。本研究では、大小判定の最大数を4、20、100とした場合を比較し、そのなかで最も性能の高かった20を採用した。多数決を行う木構造の数は、増加させるほど性

能は向上する一方、モデルの出力に寄与する入力を説明することは難しくなる。そのため、本研究の木構造の数は、木構造の数を順に増加させた場合の性能を比較し、性能が飽和した30とした。

#### 4.3 計測プロセスの効率化とRAM値の削減

機械学習では、分類の能力が高いモデルを生成する上で、データの計測ケース数(N数)が非常に重要である。一般的な多変量解析では、N数はRAM値の数に対して3倍から10倍必要であり、機械学習ではそれ以上のN数が必要とされている。本研究では、エンジンやモータの強制力に影響する約750種類のRAM値を解析対象とする。一方で、RAM値の数の10倍である7,500回の試験を、現状のエンジン起動時振動の計測プロセスで実施すると、7週間の試験期間を要し、負荷が大きい。そこで、計測プロセスの効率化と、機械学習手法で用いられる変数選択によるRAM値の数の削減により、1週間で機械学習のモデル生成に必要なデータ数を取得する。

N数1,000回の試験を、計測工数のかかるプロセスを省略・自動化することにより、計測プロセスの効率化を図った(図9)。①統合計測による計測器の削減、②計測シーケンスを組むことによる手動作業の削減、③データ後処理プログラムの改善による、計測ケースごとのデータ切出し工数の削減を行った。その結果、これまでのエンジン起動時振動の計測プロセスではN数1,000回で35時間かかっていたところを、15時間で実施することができた。



図9 エンジン起動時振動の計測プロセス

決定木の入力とするRAM値の数は、4つの手法により削減した。①一定値を取るRAM値の除外、②計測ケースごとで値が変化しない特徴量の除外、③相互相関係数が0.99以上の特徴量の組合せに対して、最も制御可能性の高い1つを残して除外、④尖度、歪度を基準に、データの分布が極端に偏っているものを除外した。

## 5 ばらつきの要因解析結果

### 5.1 エンジン起動時振動の計測結果

エンジン起動時振動の官能には、振動の大きさだけでなく、減衰の早さや周波数が影響するため、振動指標には式(1)に示す、時間積分により減衰の早さ、周波数フィルタにより周波数の影響を考慮した四乗則曝露法 VDV (Vibration Dose Value) を用いる<sup>(6)</sup>。

$$VDV - 100 = \left\{ \int_0^T a_{wx}^4 dt + \int_0^T a_{wy}^4 dt + \int_0^T a_{wz}^4 dt \right\}^{1/4} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $a_{wx}$ ,  $y$ ,  $z$  は周波数フィルタ<sup>(7)</sup> をかけた加速度時系列データである。N 数 1,000 回のエンジン起動時振動の計測結果を、横軸に VDV、縦軸に各出現頻度としてヒストグラムで整理したのが図 10 の実線である。図 10 の破線は、この VDV の分布と同じ平均値と標準偏差をもつ正規分布である。正規分布では VDV の平均値に対して +3  $\sigma$  を超える確率は 0.14% である。しかし、実線で示した本試験の試験結果は、平均値に対して +3  $\sigma$  を超えるものが、1,000 回中約 10 回存在し、正規分布に比べてばらつきが大きい。

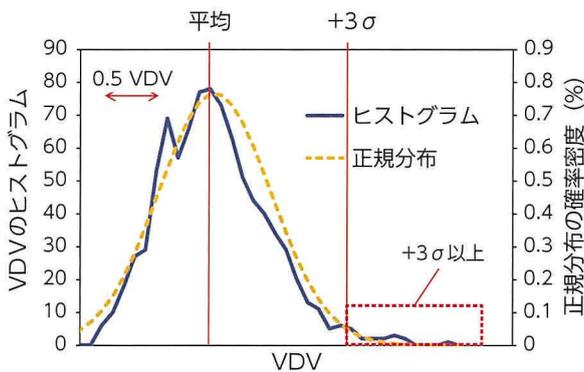


図 10 エンジン起動時振動の計測結果

### 5.2 機械学習による要因解析結果

表 1 に、寄与度が上位 20 位に入る RAM 値が、エンジン起動時振動伝達経路の各構成要素のうちどれに関係するかを層別した結果を示す。このなかには、従来からばらつきに関係すると考えられていた、モータのトルク電流制御値等の RAM 値が含まれている一方、従来着目してこなかった RAM 値も含まれている。

表 1 エンジン起動時振動のばらつきに関する RAM 値の種類

エンジン起動時振動伝達経路の各構成要素	寄与度上位 20 位以内の RAM のうち関係するものの数
モータトルク	13
初爆後の筒内圧	5
駆動トルク伝達系	2

### 5.3 抽出された要因を用いたばらつき低減手法

抽出された RAM 値のうち、従来着目されておらず、制御可能性のある RAM1 と RAM2 に着目した。振動指標 VDV のレベルが低い計測ケースと高い計測ケースにおける、RAM1 の時系列変化を比較すると、エンジン起動時にステップ状に値が減少すること、また、VDV のレベルが、低い計測ケースと高い計測ケースで値の減少量にばらつきがあることが分かった (図 11)。

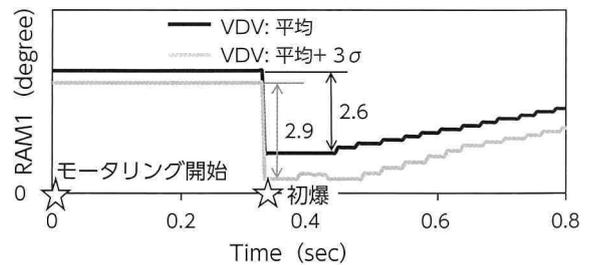


図 11 RAM1 と VDV のレベルの関係性

図 12 は、縦軸を各計測ケースにおける RAM2 の初期値、横軸を各計測ケースにおける RAM1 の減少量とし、VDV のレベルを点の色の濃さで整理したものである。このうち、濃い黒色で示した計測ケースは、VDV の平均値に対して振動が +3  $\sigma$  を超える計測ケースであり、枠で囲った領域にそのケースが密集している。従って、この領域を避けるように RAM1 の減少量を制御することで、平均値に対して +3  $\sigma$  を超える振動の発生回数を低減させることができる。なお、枠外に、VDV の平均値に対して +3  $\sigma$  を超える計測ケースが存在するが、これは RAM1, 2 以外の要因の影響が大きい場合である。

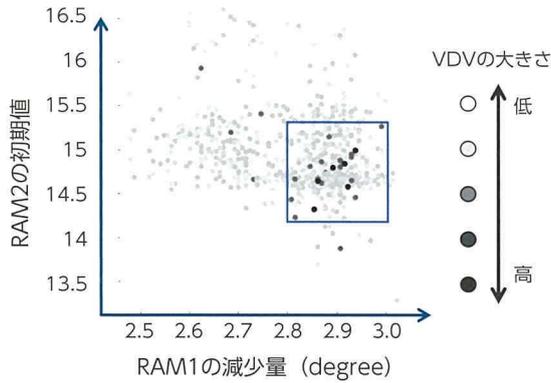


図 12 RAM1 と RAM2 により整理した VDV のレベルの分布図

RAM1 の減少量が振動へ影響する理由は、RAM1 の減少量の変化に伴って、強制力である筒内圧の大きさが変化するためである。RAM1 の減少量が 2.9 の場合と 2.6 の場合の、エンジン起動時の空燃比の時系列変化の比較を図 13 に示す。減少量が 2.6 の場合の空燃比は 14.8 から 18.0 まで上昇するのに対して、減少量が 2.9 の場合には空燃比の上昇が遅れ、空燃比は 14.6 から 16.4 となる。

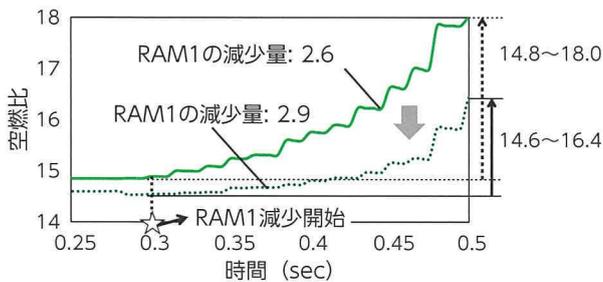


図 13 エンジン起動時の空燃比の時系列変化

図 14 は、空燃比と筒内圧の関係性を示したものである。図 13 の 2 つの計測ケースの空燃比より、各計測ケースのエンジン起動時における筒内圧を算出し、比較する。RAM1 の減少量が 2.6 の場合の筒内圧は 0.73 MPa から 0.86 MPa であるのに対して、2.9 の場合の筒内圧は 0.78 MPa から 0.87 MPa であり、強制力である筒内圧が高く、振動を増大させていると考えられる。

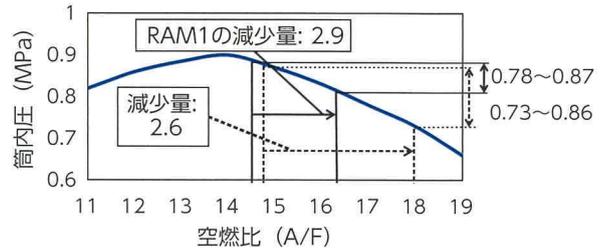


図 14 空燃比と筒内圧の関係性<sup>(8)</sup>

#### 5.4 解析モデルによる効果検証

機械学習により抽出された RAM1 の減少量という要因が、振動のばらつきに影響することを解析モデルにより検証する。RAM1 の減少量が 2.9 の計測ケースと 2.6 の計測ケースにおける、ファイアリング時のエンジントルク変動を、筒内圧とエンジントルク変動の関係式<sup>(8)</sup>を用いて計測した、筒内圧波形より算出した。このエンジントルク変動を強制力として、解析モデルへ入力し、応答としてボデー振動を算出、RAM1 の減少量が異なるケースにおける振動指標 VDV のレベルを比較した。解析モデルは、エンジンとハイブリッドシステムを組み合わせたパワープラントとボデーを剛体とし、エンジン懸架系を模擬したばねで両者を接続した、ばねマスモデルであり、強制力であるエンジントルク変動は、パワープラントへロール方向のトルクとして入力している。その結果、RAM1 の減少量が 2.6 の計測ケースにおけるエンジン起動時振動は、2.9 の計測ケースに対して、VDV で 36% 低減した。これは、VDV の平均値に対して +3 $\sigma$  を超える振動も平均値以下に低減する効果である。従って、RAM1 の減少量を制御することで、VDV の平均値に対して +3 $\sigma$  を超える振動の発生回数を抑制可能である。この結果より、本研究の要因解析により抽出された要因の振動のばらつきへの影響を検証できた。

## 6 むすび

ハイブリッド車のエンジン起動時振動のばらつきの要因解析に対して、多数の因子の寄与を解析するために機械学習を適用した。そのなかで、振動レベルと因子の寄与度の定量化に有効な手法として、ランダムフォレストを用いた。解析対象は、強制力に関係するエンジンとモータの ECU 信号に限定し、また、機械学習に必要な多くのサンプルデータの処理方法を工夫し、解析時間の効率化を図った。その

結果、従来着目していなかった因子を抽出することができた。さらに、その因子の振動のばらつきへの影響を解析モデルにより確認し、ランダムフォレストが因子数の多い過渡現象のばらつき要因解析に対して、有効な手法であることを検証した。

#### ■参考文献

- (1) 城佳久ほか：少気筒ハイブリッド車の起動時振動改良技術開発. TOYOTA Technical Review. Vol. 60, 2014, p. 67 - 71
- (2) 渡辺賢ほか：MBDプロセスによるアイドルストップ復帰時エンジン再始動振動開発. 自動車技術会学術講演会講演予稿集. No. 71-16, 2016, 20165333
- (3) 駒田匡史ほか：次世代ハイブリッド車開発における振動騒音低減技術. 自動車技術会学術講演会講演前刷集. No. 10-04, 2004, 20045298
- (4) 平井有三：はじめてのパターン認識. 森北出版, 2012, p. 219
- (5) 株式会社システム計画研究所：Pythonによる機械学習入門. オーム社, 2016, p. 248
- (6) ISO 2631-1：1997. Mechanical vibration and shock - Evaluation of human exposure to whole-body vibration - part1: General requirements
- (7) ISO 2631-2：2003. Mechanical vibration and shock - Evaluation of human exposure to whole-body vibration - part2: Vibration in buildings (1 Hz to 80Hz)
- (8) 自動車技術会：自動車技術ハンドブック 1 基礎・理論編. 2015, p. 556
- (9) 石川義和：自動車用ガソリンエンジン設計の要諦. 山海堂, 2002, p. 262

#### ■著者



下出 健人



石崎 啓祐



駒田 匡史

# 環境調和型表面処理「固相電析法」の開発

Development of Solid Electrodeposition Method as an Environmentally Friendly Surface Treatment

佐藤 祐規 \*<sup>1</sup>  
Yuki Sato

飯坂 浩文 \*<sup>1</sup>  
Hirofumi Iisaka

村井 盾哉 \*<sup>1</sup>  
Junya Murai

## 要旨

めっき・PVD等の表面処理は、さまざまな機能を安価に付与できるため、クルマづくりに不可欠である。しかし、部分成膜には不向きで、煩雑なマスクング工程が必要という根本的な課題があった。そこで、燃料電池で利用される(高分子)固体電解質膜を応用し、必要部位のみに電析による成膜が可能なスタンプ方式の手法が提案されている。本手法の高速成膜化を図るため、電気化学測定手法による電極反応・イオン輸送現象解析、および、電解質膜の構造分析を行った。その結果、陽極における酸化反応速度が律速過程であると特定、陽極材を改良することにより、電気めっきと同等の成膜速度を得られることが実証された。

## Abstract

Surface treatments such as plating and physical vapor deposition (PVD) are capable of satisfying various functional requirements at a reasonable cost, and are therefore indispensable parts of the vehicle manufacturing process. However, these treatments are not suitable for partial film formation, and have the fundamental issue of requiring a cumbersome masking step. Consequently, a stamping method capable of forming films only on necessary locations using electrodeposition was proposed based on the application of polymer solid electrolyte membranes used in fuel cells. To ensure rapid film formation using this method, electrode reactions and ion transfer phenomena were analyzed using electrochemical measurement methods, and structural analysis was applied to the electrolyte membrane. As a result, the oxidation reaction rate at the anode was identified as the rate-determining process. In addition, by improving the anode material, the developed method achieved the same film formation speed as electroplating.

キーワード 固相電析法, 環境調和型, パターニング, めっき, PVD, 表面処理, 燃料電池, 電気化学測定, イオン輸送

## 1 まえがき

「電解めっき法」や「無電解めっき法」に代表される湿式表面処理は、防錆・防食、摺動・耐摩耗、接合など、さまざまな必要機能を母材に追加できるため、自動車製造において、さまざまな部品に用いられる重要な技術である<sup>(1)</sup>。一方で、重金属イオンや強酸、強アルカリ、シアンやクロム酸などの毒物を含む廃液が大量に発生する、環境負荷の高いプロセスである。加えて、今後重要性を増す電動化・情報化向けの部品においては、配線、電極形成にパターニング(部分成膜)が必須となるが、めっきは、常に部品全体を浸漬して処理するプロセスのため、高コストで煩雑なマスクング処理が必要となる根本課題が存在する。

そこで、必要な部位にのみ成膜することにより、

この2つの課題を解決可能な革新成膜プロセスである固相電析法の開発に着手した。図1に、電解めっき法と固相電析法の成膜原理図を示す。電解めっき法の場合、液体であるめっき液を基材(成膜対象)に接触させ、直流電源の一極側に接続、通電することで、皮膜の原料である金属イオンを基材表面で還元させて成膜する(電析プロセス)。これに対し、考案した固相電析法では、基材表面への金属イオン輸送に(高分子)固体電解質膜を利用する。固体電解質を用いた電析プロセスとして、ポリイミド膜表面に金属配線を形成するために、その前駆体であるポリアミック酸のイオン交換能を利用した例があるが<sup>(2)</sup>、本検討では、固体電解質膜側ではなく、基材側への金属成膜を目的とし、離形性の良好なフッ素系固体電解質膜を用いている。この材料は、主に固体高分子型燃料電池のMEA(膜・電極接合体)用途で用いられ、その機能は電荷担体である水素イ

\*<sup>1</sup> 先進技術開発カンパニー 第2材料技術部

オンの輸送と、原料である水素、酸素ガスの遮断である。加えて、酸素極側で発生する水の、水素極側への移動を制限する<sup>(3)</sup>。この機能に着目し、電析プロセスにおいても「金属イオンを輸送し、水を制限する」ことで、原料となる金属イオン溶液使用量と基材洗浄で発生する廃液量を最小化できないか考えた。

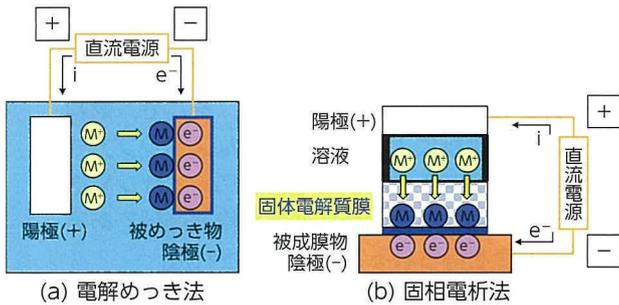


図1 各成膜法の原理

図2に、CO<sub>2</sub>排出量と廃液量の試算結果を示す。本試算は、電子基板への配線形成プロセスを想定しているが、従来の電解めっき法を固相電析法に置き換えると、CO<sub>2</sub>排出量で約1/4、廃液量で約1/30までの削減を見込むことができる。加えて、めっき槽などの大型の設備が不要となるため、工程スペースも約1/10までミニマム化できる可能性がある。

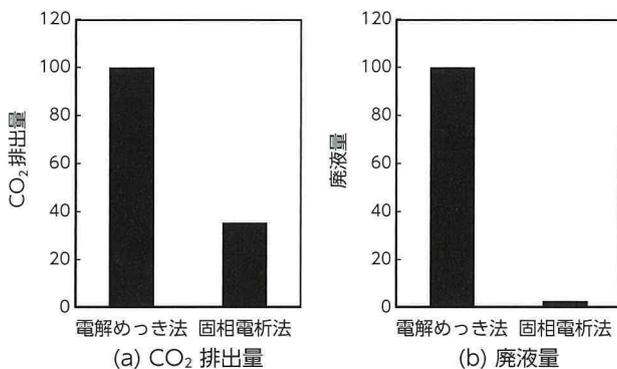
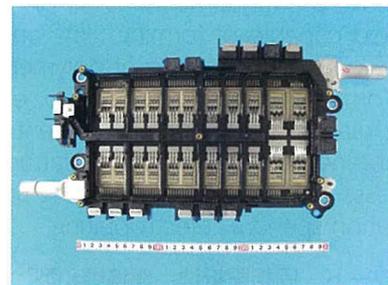


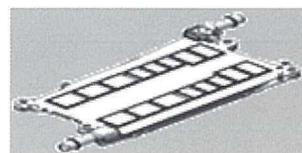
図2 CO<sub>2</sub>排出量と廃液量の比較 (試算値)

さらに、固体電解質膜を適用することで、パターンニング時のマスキングレス化も可能となる。固相電析法は、基材に対して固体電解質膜をスタンプのように押圧して皮膜形成を行う。接触させる固体電解質膜の形状を必要な皮膜形状と同じにしておけば、各表面処理法で必要となる基材側へのマスキング処理が不要となる。これは、成膜コストや生産性の観点で非常に大きなメリットである。図3に、

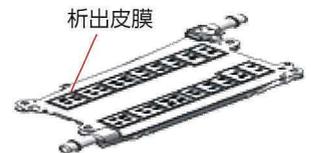
固相電析法の部品適用検討例を示す。ここで示す部品は、第3世代HVインバータに搭載されているIPM (Intelligent Power Module) の冷却器である。直交流変換にはパワー素子と呼ばれる半導体がいられ、電流や熱を輸送するために冷却器とはんだ接合されており、ここで、接合信頼性を確保するために冷却器に搭載されたDBA (Direct Bonded Aluminum) 基板表面に無電解めっき膜が形成されている。はんだ接合のためには、素子の接合部にのみめっき膜が存在すればよいが、実際には冷却器全面にめっき膜が形成されている。その理由は、マスキング処理の煩雑さと、高い処理コストにある。材料費の高い貴金属めっきを除くと、ほとんどの場合において、めっき膜面積低減によるコスト削減分よりも、マスキング処理追加によるコスト増加分が多くなる。ここに固相電析法を適用すると、マスキング処理を追加せず、必要な部位のみに皮膜を形成可能となる。



(a) 第3世代HVインバータに搭載されているIPM



(b) 現状の冷却器外観 (全面成膜)



(c) 固相電析法を適用した冷却器外観 (部分成膜)

図3 固相電析法の適用イメージ

この固相電析法のコンセプト検証と技術課題の洗い出しを目的に、簡易治具を用いたCu成膜試験を行った。図4に実験概要図を示す。成膜実験時は、Au基材上に固体電解質膜を接触、多孔質陽極と溶液供給孔が形成されたTi電極を金属製の錘で加圧、原料となる金属イオンをシリンジで供給、直流電源の正極をTiブロックと、負極を基材と接続させ、通電し、金属膜を析出した。電析プロセスでは、電流量、および、時間に金属析出量が比例し(ファラデー電気分解の法則)、これを電流密度と成膜速度に整理できる。図5に、固相電析法で形成したCu

皮膜外観を示す。各電流密度条件における成膜試験の結果、 $20 \text{ mA/cm}^2$  以上の電流密度では正常なCu析出ができず、最大成膜速度は  $0.4 \mu\text{m/min}$  であった。

従来の電解めっき法（約  $2 \mu\text{m/min}$ ）と比較して1桁程度小さく、従来工程からの置き換えを考えると、成膜速度向上が必須である。そこで成膜速度に対する基礎検討を実施した。

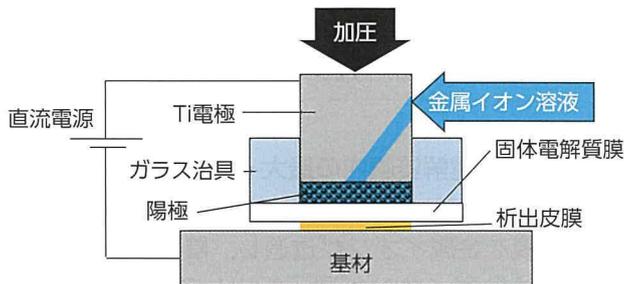


図4 実験概要図

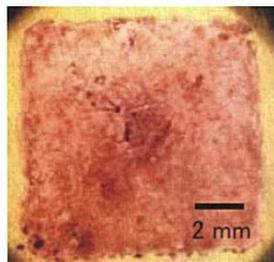


図5 固相電析法により形成されたCu皮膜

## 2 成膜速度向上に向けた基礎検討

### 2.1 固相電析法における反応・輸送機構モデル

図6に、固相電析法における陽極・陰極反応、および、金属イオン輸送機構モデルを示す。電析プロセスは、①陰極（基材）における還元反応 ( $M^{n+} + ne^- \rightarrow M^0$ )、②金属イオン輸送、③陽極における酸化反応（水の酸化： $H_2O \rightarrow 2H^+ + 1/2O_2 + 2e^-$ 、ないし、金属の酸化： $M^0 \rightarrow M^{n+} + ne^-$ ）の3要素で構成される。通常、①③の反応における自由エネルギー変化  $\Delta G$  の符号は正であるため、自発的に反応は開始せず、外部直流電源により金属イオンを還元析出させる。ここで、成膜速度を増加させるために電圧を大きくし、電流密度を増加させていくと、①③の反応速度、もしくは、②の金属イオン輸送速度が追い付かず、成膜速度が増加しない電流密度（限界電流密度）が現れる。固相電析法における成膜速度の律速過程を解明するため、各検証を行った。

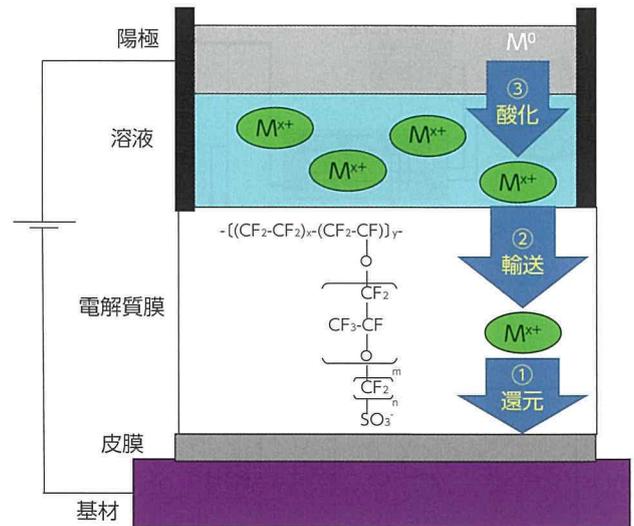


図6 イオン輸送・電極反応モデル

### 2.2 陰極における還元反応解析

固相電析法における金属イオン還元反応について、電解めっき法（固体電解質膜なし）との比較解析を行った。解析手法は、電気化学インピーダンス法を用いた<sup>(4)</sup>。固体電解質膜は、一般に市販されているNafion N117, N115と開発膜A、および、開発膜Bを用いた。Nafionに代表されるフッ素系固体電解質膜は、CF結合をもつ主骨格と、スルホン酸基をもつパーフルオロ側鎖で構成される<sup>(5)</sup>。今回用いた開発膜AはNafionと側鎖構造が異なり、開発膜Bはスルホン酸基量が多い。

続いて、図7に測定系を示す。固相電析法の構成を模擬した電気化学セルは金属イオン溶液（ $1 \text{ mol/L CuSO}_4$ ）で満たされており、作用極（WE）側には無酸素Cu板を設置し、その上に固体電解質膜を接触させている。ここの上部に対極（CE）として白金線、塩橋を介して参照極（RE）を接続し、ポテンショ/ガルバナスタット、および、ファンクションジェネレータを用いて電気化学測定を実施した。本解析では、交流信号を印加した際に測定する電圧/電流比からインピーダンスを算出、指定した周波数範囲でスイープすることにより、各周波数におけるインピーダンスを取得し、横軸を実部、縦軸を虚部にプロットする。これにより得たグラフは、Cole-Coleプロット図（図8）と呼ばれ、電気化学反応解析に用いられる。本解析では、直流電位は  $0.05 \text{ V vs SSE}$ 、電位振幅は  $10 \text{ mV}$  で、 $10 \text{ kHz}$  から  $10 \text{ mHz}$  まで1桁あたり5点の対数掃引を実施した。また、温度は  $25^\circ\text{C}$  で実施した。

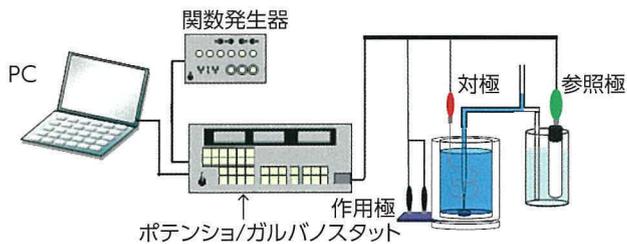


図7 電気化学測定システム

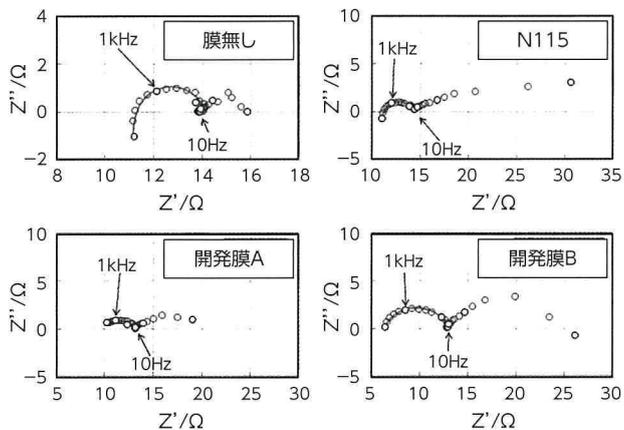
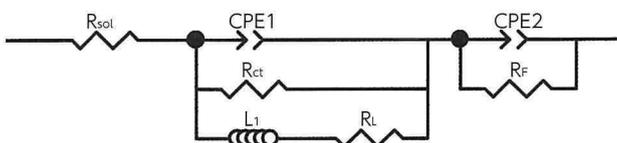


図8 Cu成膜時のCole-Coleプロット図

Cole-Coleプロットは図9のような等価回路にフィッティングすることで、各抵抗成分を算出することが可能である。本検討では、電荷移動抵抗  $R_{ct}$  (電子授受のしにくさに相当)に着目し、解析を行った。



$R_{sol}$ : 溶液抵抗  $R_{ct}$ : 電荷移動抵抗  
 CPE: Constant Phase Element } 容量性, 誘導性半円  
 $L_1$ : インダクタ  $R_L, R_F$ : 抵抗 } を表す要素

図9 等価回路図

図10に、Cu系における各固体電解質膜の電荷移動抵抗を示す。膜なし(電解めっきに相当)に対し、開発膜A,Bは低い値となっており、電解めっきよりも活性な還元反応が起こっていることが示唆される。

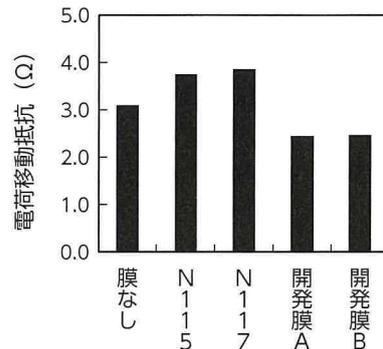


図10 各固体電解質膜の電荷移動抵抗(計算値)

### 2.3 固体電解質膜内の最大イオン輸送速度解析

固相電析法では、陽極側に存在する溶液から固体電解質膜を金属イオンが透過し、陰極に到達する。陰極では金属イオンが還元析出して消費されるため、濃度低下に伴った拡散により、陽極側から補給されることになる。電流密度を増加させ、還元速度を増加させると、固体電解質膜内の輸送速度が追い付かなくなり、成膜速度の律速過程になり得る。

そこで、固体電解質膜内の最大イオン輸送速度の解析を行った。実験手順を以下に説明する。固体電解質膜を高濃度の金属イオン溶液に浸漬すると、膜中の水素イオンと液中の金属イオンの間でイオン交換が進行し、固体電解質膜内の陽イオンのほぼ全てが金属イオンに置換される。続いて、高濃度の酸溶液に固体電解質膜を浸漬することで、膜内のほぼ全ての金属イオンを酸溶液中に放出することができる。本解析では、各固体電解質膜をイオン交換水で24h浸漬した後、濃度1 mol/LのCuSO<sub>4</sub>水溶液に一定時間浸漬した。表面に付着した余剰の溶液を除去した後、30%硫酸水溶液に1h浸漬し、その溶液をICP-OES (Inductivity coupled plasma optical emission spectrometer)でCuイオン濃度を分析、水溶液量から固体電解質膜に導入されたイオン量を測定した。

図11に、固体電解質膜がNafion N117、かつ、常温で実施した条件におけるイオン導入量と浸漬時間の関係を示す。

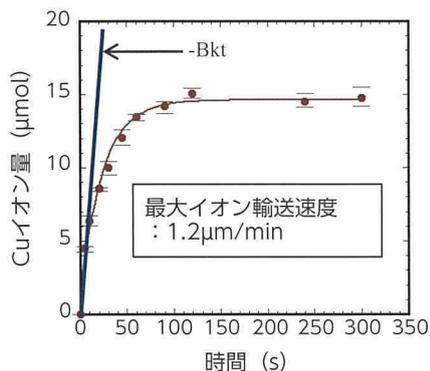


図 11 Nafion N117 内の Cu イオン量 (25°C)

最大イオン輸送速度を算出するため、イオン導入量  $a(t)$  と浸漬時間  $t$  との関係を示す式 1 を用いてフィッティングを行い、マクロリン展開による近似から式 2 を導く。ここで、 $A, B$  は定数、 $k$  は速度定数 ( $s^{-1}$ )、 $t$  は浸漬時間 (s) を表す。

$$a(t) = A + B \cdot e^{-kt} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$a(t) = A + B - Bkt \quad \dots\dots\dots (2)$$

式 2 が浸漬初期の傾きであり、最大イオン輸送速度に相当する。ここで算出された値は  $0.258 \times 10^{-6} \text{ mol/cm}^2/\text{s}$  であり、成膜速度換算で約  $1.2 \text{ } \mu\text{m/min}$  になる。

電荷移動抵抗  $R_{ct}$  が最も低い、開発膜 B を適用した条件における最大イオン輸送速度を図 12 に示す。膜種の変更で、最大イオン輸送速度は  $3.9 \text{ } \mu\text{m/min}$  に到達した。

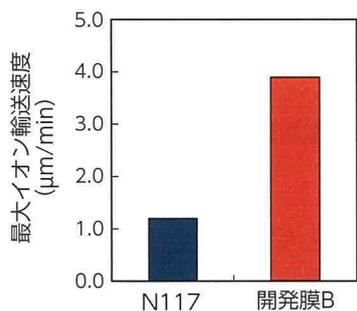


図 12 最大イオン輸送速度

### 2.4 陽極における酸化反応解析

陽極での反応が成膜速度に与える影響を確認するため、従来材の Pt/Ti 陽極 (水の酸化反応:  $\text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{H}^+ + 1/2\text{O}_2 + 2\text{e}^-$ ) と、電解めっきで用いられる Cu 陽極 (Cu の溶解反応:  $\text{Cu} \rightarrow \text{Cu}^{2+} + 2\text{e}^-$ ) で成膜試験を行った。試験方法は 1 章で実

施した試験と同様である。図 13 に、各陽極材による電圧と電流密度の関係を示す。Pt/Ti 陽極の理論析出開始電圧は約 0.9 V、Cu 陽極は 0.0 V であるが、 $10 \text{ mA/cm}^2$  に達する電圧は、Pt/Ti 陽極で約 2.0 V、Cu 陽極で約 0.2 V であり、Cu 陽極の反応がより活性であることを示している。

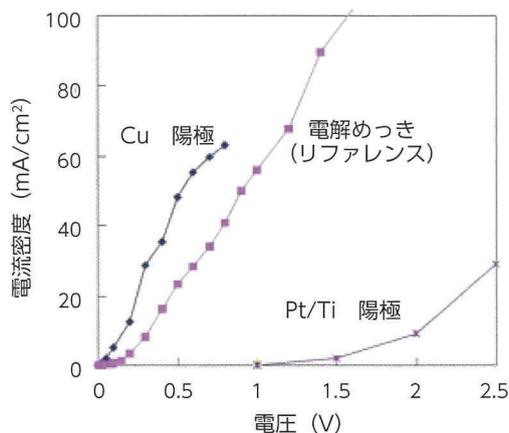


図 13 各陽極材使用時の電圧と電流密度の関係

続いて、陽極材の比表面積について検討した。溶液に接触する陽極材の全表面で反応が起こるため、反応速度は表面積と強い相関がある。そこで、Cu 系で、各比表面積の陽極におけるアノード分極測定を実施した。実験系は 2.2 項で使用した電気化学セルを用いた。図 14 に、電位と電流密度の関係を示す。ここで電流密度の算出に用いた表面積は、陽極外形を直方体形状とみなして算出してあり、見かけの電流密度となっている。板状の陽極材 (無酸素 Cu 板, 含リン Cu 板) と比較し、比表面積の大きい発泡 Cu や Cu メッシュ板は、同電位で高い電流密度が得られている。特に、Cu メッシュは  $150 \text{ mA/cm}^2$  (成膜速度  $3 \text{ } \mu\text{m/min}$  相当) までの電流密度では最も反応活性が高い。

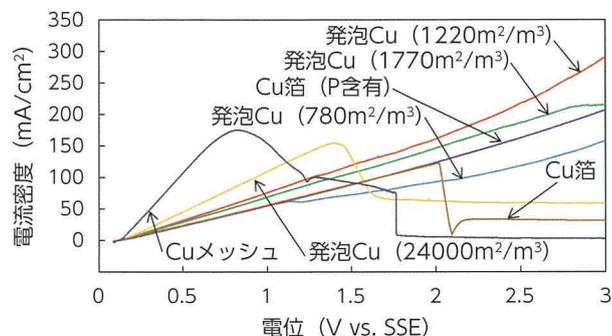


図 14 各 Cu 陽極材使用時の電位と電流密度の関係

### 3 考察と検証試験

各解析において、Cu 成膜における律速過程は、固体電解質膜内のイオン輸送、および、陽極における酸化反応であることを示唆している。固相電析法では、イオン輸送に関して、電解めっき法で用いられる攪拌による物質移動（対流）が利用できない。そのため、固体電解質膜内の拡散速度を増加させることが重要であり、具体的な手法としては、イオンチャンネルがより発達した固体電解質膜（本検討内では、開発膜 A、B に相当）を用いることである。

図 15 に、SAXS (Small Angle X-ray Scattering) で固体電解質膜の構造分析を実施した結果を示す。散乱ベクトル  $q$  が  $0.2 \text{ \AA}^{-1}$  付近に現れる親水部周期構造 ( $d_1$ ) を確認すると、最大イオン輸送速度が大きい開発膜 B の親水部が Nafion より発達していることが確認できる。ただし、先述のように、Nafion N117 の最大イオン輸送速度は  $1.2 \mu\text{m}/\text{min}$  であるため、より根本的には陽極の酸化反応が律速過程である可能性が高い。また、従来の Pt/Ti 陽極から、反応活性の高い Cu メッシュに変更して反応速度を増加させることで、成膜速度が大幅に向上する可能性がある。

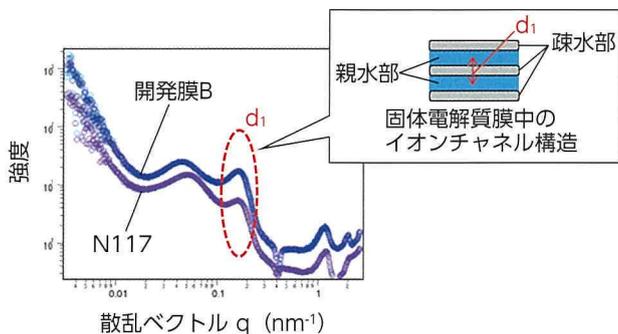


図 15 小角 X 線散乱法 (SAXS) による固体電解質膜構造解析結果

上記対策の効果について検証するため、固体電解質膜を Nafion N117 から開発膜 B に、陽極材を Pt/Ti 陽極から Cu メッシュにそれぞれ変更し、成膜試験を実施した。図 16 に、電圧と電流密度・成膜速度の関係を示す。電圧の上昇とともに電流密度・成膜速度は増加し、約  $2.0 \mu\text{m}/\text{min}$  においても正常な Cu 皮膜が形成できることを確認した。図 17 に示すように、これは従来の電解めっきと同等

の成膜速度である。ただし、Cu メッシュは消耗性の陽極であるため、定期的な交換が必要となる。また、イオンチャンネルが発達した固体電解質膜の適用や、成膜温度条件を高温化することは、固体電解質膜の耐久性の低下を伴う。そのため、各対策によるコストへの影響を見極めた上での適用が必要となる。

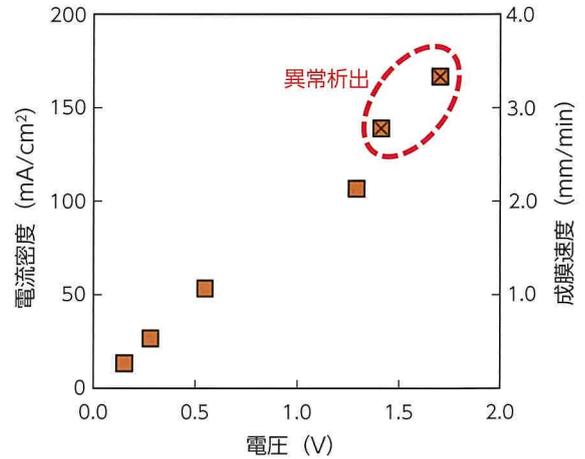


図 16 電圧と電流密度（成膜速度）の関係（Cu メッシュ使用， $60^\circ\text{C}$ ）

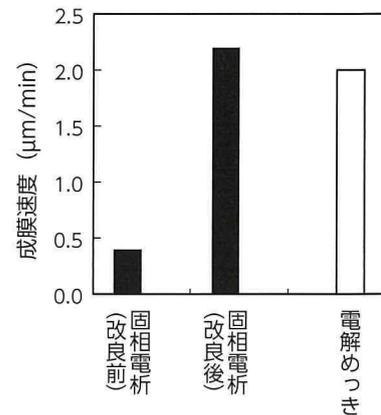


図 17 固相電析法と電解めっきの成膜速度の比較

固相電析法を考案した当初より、対流が起こらない固体電解質膜を適用するデメリットとして、成膜速度に対する懸念があったが、本検討により、高いポテンシャルが示された。さらなるプロセス条件の最適化や、本手法に適した固体電解質膜の開発で、従来の電解めっき法を大きく超える生産性をもつ成膜手法の実現が期待できる。

## 4 むすび

固体電解質膜を適用した新たな表面処理として固相電析法を考案し、コンセプト検証を実施した。そこで明確化した課題である低い成膜速度について、原因の解析と対策を行った結果を以下に示す。

1. イオン輸送速度、電気化学測定による解析の結果、固体電解質膜のイオン輸送速度と、陽極反応速度が低い成膜速度を主要因と推定した。

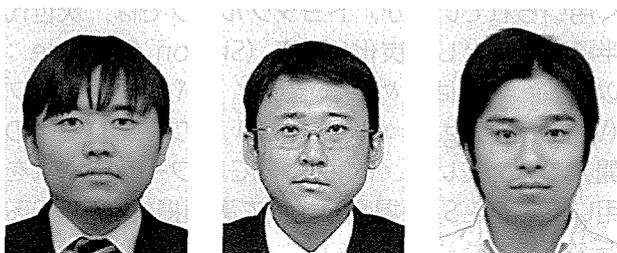
2. イオンチャンネルが発達した固体電解質膜の適用、陽極材の変更 (Pt/Ti 板 → Cu メッシュ) で、成膜速度を約  $0.4 \mu\text{m}/\text{min}$  から約  $2.0 \mu\text{m}/\text{min}$  とし、従来の電気めっき同等に向上させた。

本検討にあたり、ご指導、ご協力をいただいた東京理科大学工学部先端科学科教授・板垣昌幸先生、並びに、甲南大学フロンティアサイエンス学部生命科学科教授・赤松謙祐先生に、厚く感謝の意を表す。

### ■参考文献

- (1) 電気鍍金研究会編：現代めっき教本。日刊工業新聞社，2011
- (2) K. Akamatsu et al. : Fabrication of Silver Patterns on Polyimide Films Based on Solid-Phase Electrochemical Constructive Lithography Using Ion-Exchangeable Precursor Layers. *Langmuir*. Vol.27, No.19, 2011, pp 11761 - 11766
- (3) 本間琢也：固体高分子形燃料電池。電気学会誌。Vol 122, No. 1, 2002, pp. 29 - 32
- (4) 板垣昌幸：電気化学インピーダンス法 —原理・測定・解析—。丸善出版，2011
- (5) H. Yeager et al. : Perfluorinated Ionomer Membranes. *ACS Symp. Series*, 1982, pp 1 - 6

### ■著者



佐藤 祐規

飯坂 浩文

村井 盾哉

# 冷却機構内蔵パワーデバイスの研究

Research into Power Devices with Embedded Cooling

福岡 佑二<sup>\*1</sup>  
Yuji Fukuoka

Feng Zhou<sup>\*2</sup>

Ercan M. Dede<sup>\*2</sup>

Ki Wook Jung<sup>\*2</sup>

Shailesh N. Joshi<sup>\*2</sup>

Yanghe Liu<sup>\*2</sup>

## 要旨

将来の環境対応車に向け、ワイドバンドギャップ (Wide-Bandgap : 以下 WBG) パワーデバイスの開発が進んでいる。WBG パワーデバイスは、発熱密度が従来のシリコンデバイスと比べて約 4 倍となるため、新たな冷却構造が必要である。本研究では、デバイスに冷却機構を内蔵したチップレベル冷却器を提案し、微細横型流路を有する冷却器の作製および評価を行った。また、さらなる冷却性能向上のため、トポロジー最適化手法を応用して衝突噴流型冷却器を設計し、シミュレーションで、目標を達成する  $184\text{kW}/\text{m}^2\text{K}$  の熱伝達係数を確認した。

## Abstract

Wide-bandgap (WBG) power devices are being developed for application in future generations of environmentally friendly vehicles. However, since the heat density of WBG power devices is approximately four times higher than conventional silicon devices, a new cooling structure is required. This research has proposed a cooling mechanism embedded in the device called a chip-scale cooler. This cooler, which contains minute lateral flow paths, was then fabricated and evaluated. Additionally, to further enhance cooling performance, a jet impingement cooler was designed through the application of topology optimization methodology. Simulations confirmed that this design achieved the targeted heat transfer coefficient of  $184\text{ kW}/\text{m}^2\text{K}$ .

キーワード 冷却器, パワーデバイス, インバータ, ワイドバンドギャップ, 半導体プロセス, 衝突噴流

## 1 はじめに

近年、CO<sub>2</sub> 排出による地球温暖化が問題となっており、トヨタ自動車でも環境対応車として、ハイブリッド自動車をはじめ、燃料電池車、電気自動車の開発を行っている。環境対応車は、すべて電動パワートレインを用いており、パワーコントロールユニット (以下 PCU) を搭載している (図 1)。

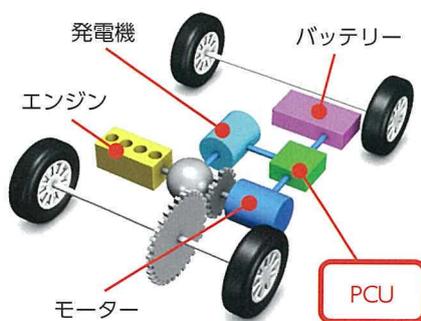


図 1 ハイブリッド自動車の構成

PCU は、バッテリー・モーター・発電機間の電力を制御する役割を担っており、PCU 内部には、電流と電圧を制御するためのパワーデバイスが使われている (図 2)。パワーデバイスは、車両における電気損失の約 2 割を占めるため、発熱が大きい。従って、パワーカードと呼ばれる樹脂モールドにパッケージングされ、パワーカードと水冷式冷却器を積層したパワーモジュール内で、両面から効率的に放熱されている<sup>(1)</sup>。

パワーデバイスは従来、シリコン (以下 Si) が広く用いられているが、トヨタグループでは、次世代半導体材料として炭化ケイ素 (Silicon Carbide : 以下 SiC) をはじめとするワイドバンドギャップ (Wide-Bandgap : 以下 WBG) パワーデバイスの開発を進めている。PCU に SiC パワーデバイスを用いた場合、Si の場合と比べて導通損失を約 60% 低減できるため、燃費向上や PCU の小型化が期待できる<sup>(2)</sup>。

<sup>\*1</sup> パワートレインカンパニー EHV 電子設計部

<sup>\*2</sup> Toyota Research Institute of North America R&D, Toyota Motor North America, INC.

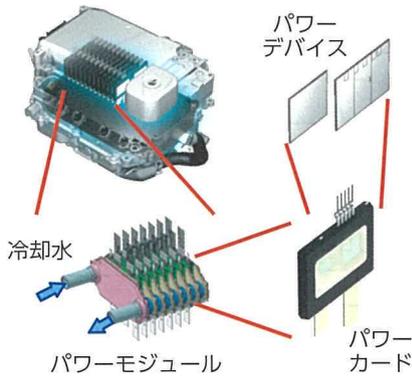


図2 PCUの内部構造

SiCパワーデバイスのチップサイズは、Siより小さくできるため、小型で高パワー密度なパワーモジュールが実現できる。しかし、小型化によってパワーデバイスからの発熱密度は高くなり、現行Siパワーデバイスの250W/cm<sup>2</sup>に対し、SiCパワーデバイスでは約1kW/cm<sup>2</sup>と、4倍の高発熱密度になることが課題である(図3)<sup>(3)</sup>。従来の冷却構造では、冷却性能に限界が見えはじめており、飛躍的に冷却性能を向上させる開発が必要である。

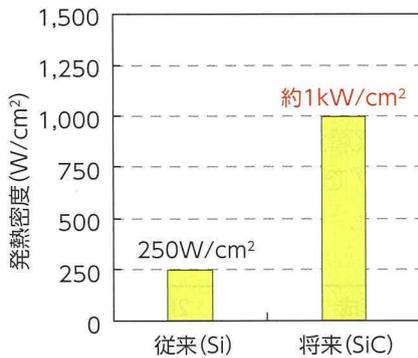


図3 パワーデバイスの発熱密度

## 2 チップレベル冷却器のパワーデバイスへの応用

本研究では、高冷却性能を有する新たな冷却構造として、チップレベル冷却器を提案する。冷却機構の従来構造を図4に、今回の提案構造を図5に示す。従来構造では、パワーデバイスを冷却器で挟み込み、デバイスの表裏面から放出される熱を銅ブロックで大面積に拡散している。冷却器はアルミで形成されており、銅ブロックにより拡散された熱を冷却水に放熱している。冷却器と銅ブロックの間には、セラミックでできた絶縁板が配置される。冷却

器は、アルミの薄板を波型に成形したフィンにより冷却面積を大きくすることで、冷却水への熱伝達を促進している。

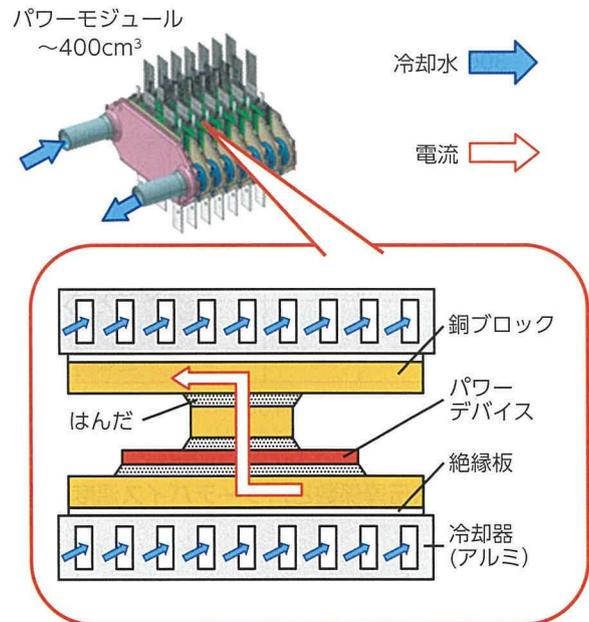


図4 従来冷却器の内部構造

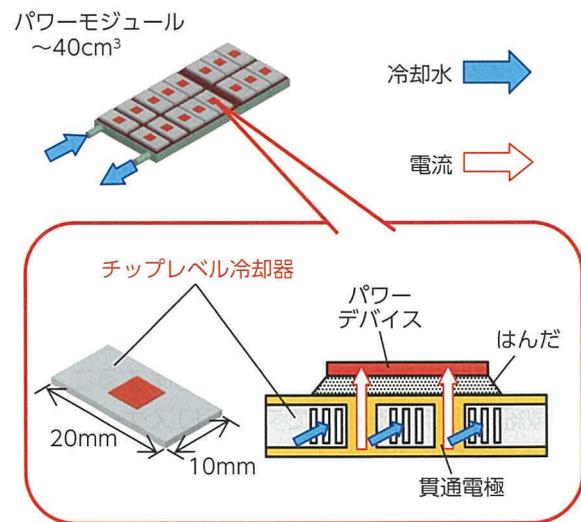


図5 チップレベル冷却器の内部構造

一方、提案構造のチップレベル冷却器は、パワーデバイスの近傍に冷却流路を形成し、冷却流路のマイクロスケールを微細化して冷却面積を飛躍的に増大させることによって、高い冷却性能を達成できる。試算では、従来の冷却器と比較して、冷却面積を約5倍にすることが可能である。1kW/cm<sup>2</sup>で発熱するデバイス温度と、冷却性能を示す熱伝達係数 $\alpha$ の相関(シミュレーション結果)を図6に示す。これより、WBGパワーデバイスの動作温度

である 175°C以下に保つために必要な熱伝達係数  $\alpha$  は  $130\text{kW}/\text{m}^2\text{K}$  以上と見積もり、この冷却性能を目標とした。従来の熱伝達係数は約  $20\text{kW}/\text{m}^2\text{K}$  であり、飛躍的に冷却性能を向上する必要がある。

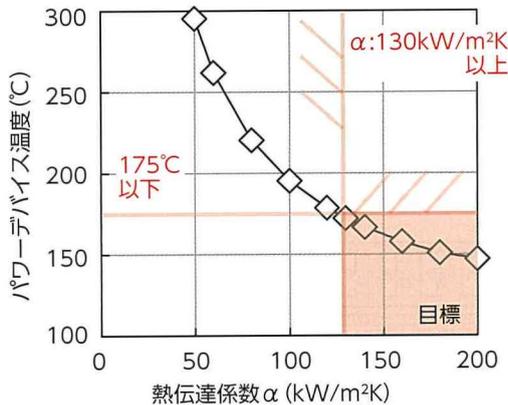


図6 冷却器の熱伝達係数とパワーデバイス温度の関係

チップレベル冷却器は、将来の高周波デバイスや3Dメモリー向けに研究が進められてきた<sup>(4)(5)</sup>。先行研究では、低電流がデバイス表面を水平方向に流れる、横型デバイスへの応用が検討されている。一方、高電流を制御するパワーデバイスは、デバイスの垂直方向に電流が流れる縦型デバイスのため、冷却流路内に電流経路を配置する必要があり、電流経路と冷却流路を電氣的に絶縁する必要がある。

提案構造は、別体の冷却チップを作製してデバイスと接合する構造である。この場合、電流経路を確保する手段として、貫通電極を形成する。冷却チップの材料は、Si単結晶を用いる。Siは高い熱伝導率を有し、Si半導体の比抵抗制御技術を用いて電流経路と冷却流路の電氣的絶縁を確保することができ、微細加工技術を用いてマイクロスケールの微細な冷却流路を形成できる。

### 3 横型流路冷却器の試作

本構造の実現可能性検討として、はじめに、横型でストレートの流路を有するチップレベル冷却器を試作した。構造を図7に示す。冷却器は、2層の薄板Siチップから構成される。1層目は、ストレートの微細冷却チャンネル構造とマニホールドを有する。2層目は、冷却水のインレットとアウトレットを有し、1層目と接合することで微細チャンネルを密封する機能を有する。今回は試作品のため、貫通電極は作製せず、冷却能力のみの評価を目的とした。

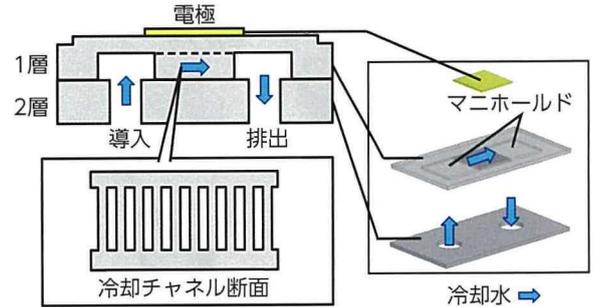


図7 横型流路冷却器の試作品

作製手順を図8に示す。はじめに、図8(a)に示すように、Siウェーハ1層目の裏面に微細チャンネルとマニホールドを形成する。微細チャンネル形成には、プラズマによるSi深堀エッチング技術を用いた。微細チャンネルの寸法は幅  $30\mu\text{m}$ 、深さ  $320\mu\text{m}$  である。2層目には、冷却水のインレット、アウトレット用の穴を、同様のエッチング技術を用いて形成した。1、2層目を作製した後、それぞれのSiウェーハを接合する。接合方法は、Si表面を疎水化し、真空中で圧接して仮貼り付けした後、 $1100^\circ\text{C}$ の窒素雰囲気アニールすることで、Si原子を相互拡散して接合した。接合界面の拡大SEM画像を図8(b)に示す。SEM画像から境界は見られず、Siウェーハ同士が完全に接合されていることを確認した。ウェーハ接合後、1層目の冷却面に真空蒸着法により、Ti/Ni/Au電極を成膜してダイシングで個片化し、図8(c)のような冷却器を作製した。

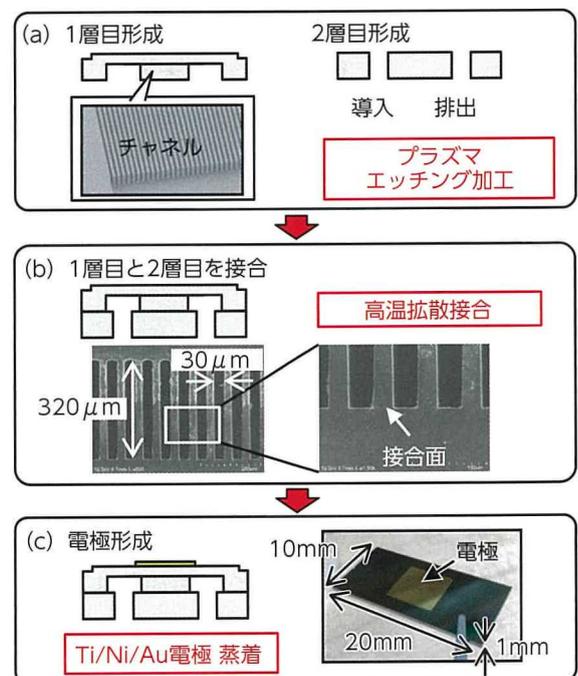


図8 チップレベル冷却器の作製方法

## 4 横型流路冷却器の性能評価

冷却性能評価には、パワーデバイスを模擬した発熱デバイスを使用した。発熱デバイスは表面上にPt/Auの抵抗体が形成されており、作製したSi製チップレベル冷却とハンダで接合した。接合した横型流路のSi製チップレベル冷却器は、図9、10に示す評価ベンチに取り付け、冷却性能評価を行った。発熱デバイスはPCB基板とワイヤボンディングで接続し、電力を印加させて発熱させた。冷却器はPCBと樹脂ブロックによって固定し、冷却水を導入した。発熱デバイスの表面温度は直上に設置したIRカメラで測定し、インレット、アウトレットの冷却水温度は熱電対で計測することにより、冷却性能を評価した。

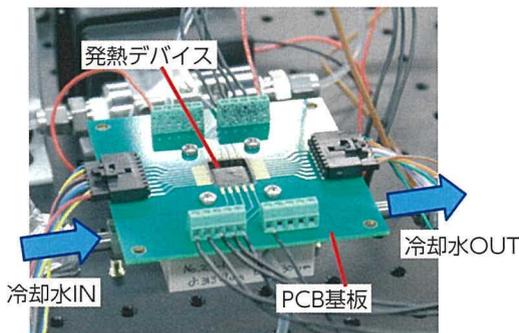


図9 評価ベンチの外観

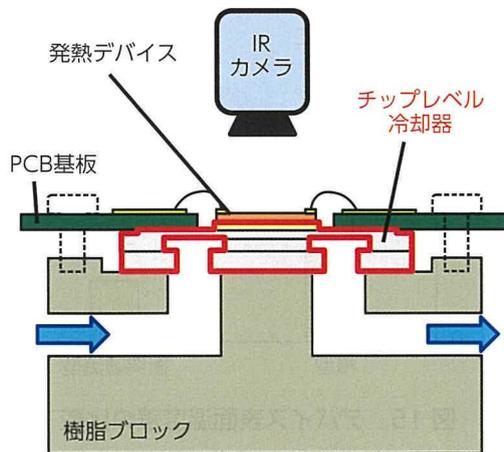


図10 評価ベンチの断面模式図

熱伝達係数 $\alpha$ は以下の式で求められる。

$$\alpha = Q / (T_{Dmax} - T_{Cin}) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $Q$ は発熱密度、 $T_{Dmax}$ はデバイス最高温度、 $T_{Cin}$ は冷却水導入温度である。

図11に、冷却性能評価時のデバイス表面温度測定の結果を示す。冷却水は、冷却水導入温度を65℃に調整したHV車用の冷却液を用いて、規定の圧力損失を超えない流量で循環させた。デバイスは、一辺が6mmであり、発熱密度130W/cm<sup>2</sup>となる電力を加えた。この時、デバイス表面温度は冷却水方向に増加する分布となり、最高温度は冷却水下流側で87.4℃、熱伝達係数の実測値は58kW/m<sup>2</sup>Kとなった。同条件で、熱流体シミュレーションを行った結果、54kW/m<sup>2</sup>Kとなり、ほぼ一致する結果となった。しかし、横型流路の冷却器では、SiCパワーデバイス向けのターゲットである、熱伝達係数130kW/m<sup>2</sup>K以上を達成することはできなかった。

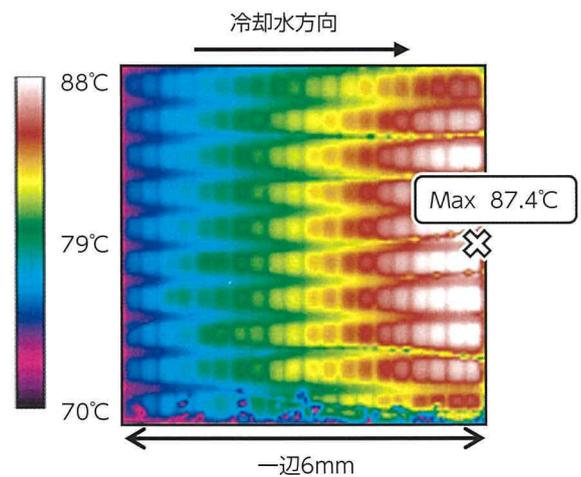


図11 IRカメラで測定したデバイス表面温度分布

## 5 衝突噴流型冷却器の設計

冷却性能のさらなる向上を目指し、衝突噴流型チップ冷却器の設計に取り組んだ。横型流路の冷却器では、図12(a)に示すように、細く長い冷却流路を冷却水が通るために、デバイスからの熱を受けて冷却水の温度が上昇していき、下流側で冷却性能が落ちてしまう。温度上昇を抑えるために流量を増やすことは、圧力損失の増加につながるため、困難である。結果として、デバイス面内の温度差 $\Delta T$ は15.4℃と、大きな差があった。従って、デバイス面に対して、均一に冷却水を接触させる設計が必要となるが、そのためにはチップの横方向に冷却水を流すのではなく、図12(b)に示すように、縦方向に冷却水を流して放熱面に衝突させる、衝突噴流型が効果的であると考えた。

論文解説

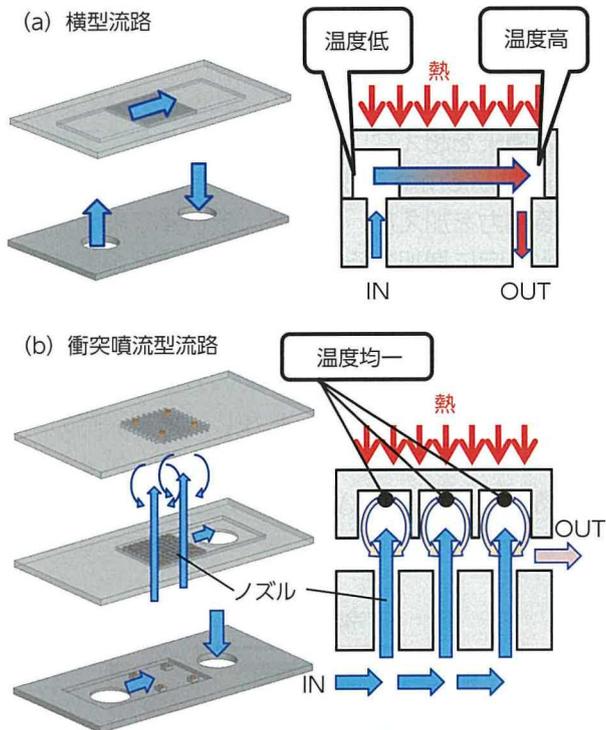


図 12 横型流路と衝突噴流型流路の比較

衝突噴流型チップ冷却器の断面構造を図 13 に示す。横型流路の構造と異なる点は、チップを 3 層構造にして 2 回接合することである。1 層目の裏面には、図 14 に示す放射型チャンネルが形成されている。これは、トポロジー最適化手法を用いて設計した。トポロジー最適化手法とは、シミュレーションを繰り返すことで、性能を最大化するトポロジー（構造形態）を自動で作りに出す計算技術である。今回は、冷却面の温度を均一にしながら、冷却水の圧力損失が最小、かつ熱伝達係数が最大になる最適な流路形状を自動計算した<sup>(6)</sup>。冷却水を衝突させるためのノズルは、2 層目に形成する。トポロジー最適化の後、熱流体シミュレーションを用いて、各部の設計寸法を決定した。結果、ノズル直径を 160  $\mu\text{m}\phi$ 、ユニット 1 セルの大きさを 500  $\mu\text{m}\times 500 \mu\text{m}$  とすることで、目標の熱伝達係数  $\alpha$  と圧力損失を達成できることがわかった。

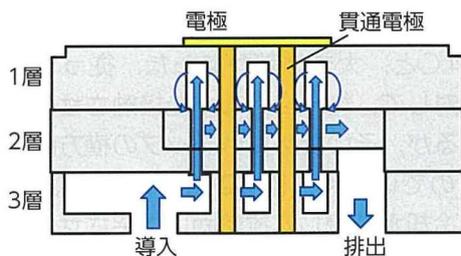


図 13 衝突噴流型冷却器の断面構造

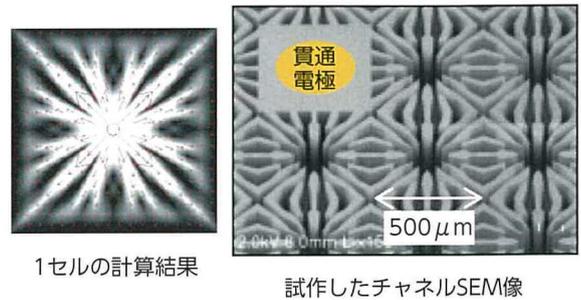


図 14 トポロジー最適化手法によって得られた放射型冷却チャンネル

また、微細チャンネルのセル部には、電流経路として、貫通電極用の領域を設けている。貫通電極は、多く設けるほど電気抵抗を下げることができる一方、その領域は冷却チャンネルが無いので、冷却性能が低下することが予想される。そこで、熱伝達係数と電気抵抗を両立できるレイアウトを検討した結果、ノズルユニット 12 セル当たり、貫通電極を 1 セル配置することが最適設計であった。

図 15 に、衝突噴流型冷却器と得られた放射型チャンネルによる、デバイス表面温度均一化の効果を示す。シミュレーション結果では、温度差  $\Delta T$  は横型流路で 15.4  $^{\circ}\text{C}$  だったのに対して、衝突噴流型では 3.3  $^{\circ}\text{C}$  となり、デバイスが均一に放熱されていることがわかった。

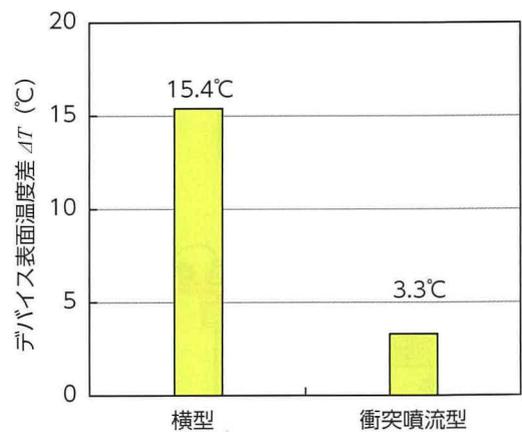


図 15 デバイス表面温度差の比較

シミュレーションにて衝突噴流型チップ冷却器の熱伝達係数を計算した結果を、横型流路の実測結果と合わせて、図 16 に示す。衝突噴流型チップ冷却器の熱伝達係数は 184  $\text{kW}/\text{m}^2\text{K}$  となり、目標性能 130  $\text{kW}/\text{m}^2\text{K}$  を達成できることが確認された。

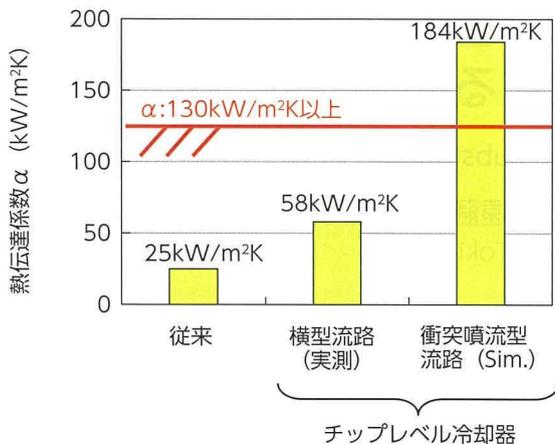


図 16 冷却器の熱伝達係数

## 6 まとめと今後

次世代 WBG パワーデバイス用冷却器として、チップレベル冷却器を開発した。横型流路のチップレベル冷却器を試作して評価した結果、実測で熱伝達係数 58kW/m<sup>2</sup>K が得られた。この実測値は、計算値の 54kW/m<sup>2</sup>K とほぼ一致しており、シミュレーションの精度が高いことが確認された。しかし、目標性能である 130kW/m<sup>2</sup>K 以上の値は得ることができなかった。

さらなる性能向上を目指し、衝突噴流型チャンネル構造の冷却器の設計に取り組んだ。トポロジー最適化手法を用いてチャンネル構造を設計し、電気抵抗と冷却水の圧力損失を抑えながら、シミュレーションで熱伝達係数 184kW/m<sup>2</sup>K を得ることができた。

現在、衝突噴流型チップ冷却器の実機を作製中であり、今後、シミュレーションで得られた冷却性能と実測値を比較して、整合性を確認する。

また、チップレベル冷却器の実現に向けての課題として、微細チャンネル内への異物の目詰まりや、長期使用時の信頼性が挙げられる。冷却性能の目標を達成した後に、実使用を模擬したテスト環境を構築し、長期安定稼働等を評価しながら、改善を進めていく。

### 参考文献

(1) 坂本善次：両面放熱パワーモジュール「パワーカード」の実装技術。DENSO TECHNICAL REVIEW. Vol.16, 2011, P. 46 - 56

(2) K. Hamada et al.: SiC-Emerging power device technology for next-generation electrically powered environmentally friendly vehicles. IEEE Transactions on Electron Devices. Vol. 62, No. 2, 2015, pp. 278 - 285

(3) A. Bar-Cohen et al.: Near-junction microfluidic cooling for wide bandgap devices. MRS Advances. Vol. 1, No. 2, 2016, pp. 181-195

(4) D. Altman et al.: Development of a Diamond Microfluidics-Based Intra-Chip Cooling Technology for GaN. 2015 Proc. InterPACK Conf., Paper IPACK2015-48179, V003T04A006

(5) X. Zhang et al.: 3D IC with Embedded Microfluidic Cooling Technology, Thermal Performance, and Electrical Implications. 2015 Proc. InterPACK Conf., Paper IPACK2015 - 48584, V003T10A008

(6) E.M. Dede et al.: Scale effects on thermal-fluid performance of optimized hierarchical structures. Proceedings of the ASME/JSME 8<sup>th</sup> Thermal Engineering Joint Conference (AJTEC). Mar. 2011

### 著者



福岡 佑二



Feng Zhou



Ercan M. Dede



Shailesh N. Joshi



Ki Wook Jung



Yanghe Liu

# 公益財団法人 大河内記念会 第 63 回大河内記念生産賞 容積と CO<sub>2</sub> 排出を大幅に削減する塗装ラインの開発

Development of Highly Compact Painting Line with Substantially Lower CO<sub>2</sub> Emissions

林 晃基 \*1  
Koki Hayashi

村田 亘 \*1  
Wataru Murata

遠藤 登喜夫 \*1  
Tokio Endo

飯田 達也 \*1  
Tatsuya Iida

## 1 はじめに

近年、自動車製造分野において、製造工場から排出される環境負荷物質の低減として、VOC（揮発性有機化合物）やCO<sub>2</sub>（二酸化炭素）排出量の低減といった環境への取り組みが重要となっている。

自動車製造工程は、プレス工程からボディ溶接、塗装、部品の組み立てと、車両完成にいたるまでの工程が多く、環境へのインパクトも大きい。そのなかでも、CO<sub>2</sub> 排出量すなわちエネルギー使用量は塗装工程が最も多く、塗装工程の省エネ対策が急務の課題となっていた（図 1）。

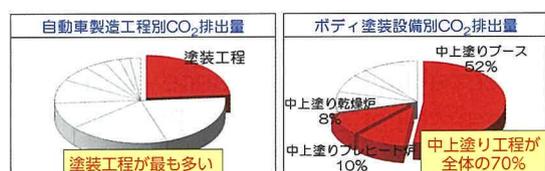


図 1 工程・設備別 CO<sub>2</sub> 排出量

本開発は、中上塗り塗装工程の全プロセスにおいて徹底した改善を施すことによって、塗装ライン容積 40% 減、CO<sub>2</sub> 排出量 32% 減、据付工事期間 50% 減、投資額 30% 減という画期的な塗装ラインを実現したものである。

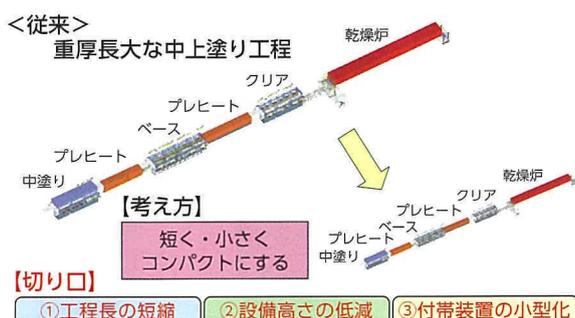


図 2 開発コンセプト

## 2 開発の概要

本開発のポイントは、「工程長の短縮」、「設備高

さの低減」、「付帯設備の小型化」を実現した生産技術開発である（図 2）。内容は、ブースアンダーセクションの低床化、ブース給気室の薄型化、清浄工程の自動化、ロボット加工能力の向上、内板工程の自動化、搬送ピッチの最適化、乾燥炉断面の縮小、小型脱臭装置の有効活用、ブース空調機構・制御の革新、据付工事期間の半減、工事安全性の向上など、多岐に渡る。ライン容積削減の最大のポイントは、給気室とアンダーセクションのコンパクト化による塗装ブース自体の大幅な小型化で（図 3）、CO<sub>2</sub> 排出量の大幅削減に寄与している（図 4）。

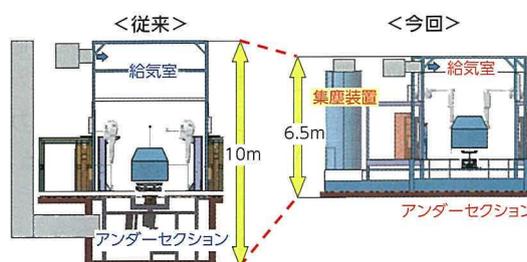


図 3 塗装ブースのコンパクト化

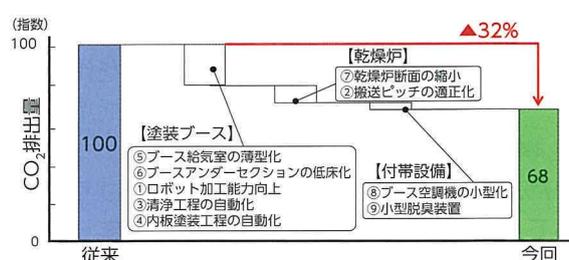


図 4 CO<sub>2</sub> 排出量の削減

## 3 おわりに

本開発は、堤工場のプリウス生産ラインに設置し、品質・設備不具合が無いことを確認後、以降の新工場や老朽更新プロジェクトに採用、グローバル展開を図っている。

今後も、生産技術開発で「トヨタ環境チャレンジ 2050」へ貢献していきたい。

\*1 MS Company MS 成形塗装生技部

# 平成 29 年度省エネ大賞 経済産業大臣賞 新型プリウス PHV のプラグインハイブリッドシステム

The Plug-In Hybrid System for the New Prius PHV

市川 真士\*1      村田 崇\*2      木野村 茂樹\*3  
Shinji Ichikawa      Takashi Murata      Shigeki Kinomura  
鈴木 岐宣\*4      三好 達也\*5  
Michinobu Suzuki      Tatsuya Miyoshi

## 1 はじめに

新型プリウス PHV のプラグインハイブリッドシステムは、世界トップレベルの環境性能（電費・燃費）の実現と、EV 走行性能の大幅向上による商品性の実現を目指し、開発した。本稿では、省エネ大賞にてその高い環境性能が認められたプラグインハイブリッドシステムを紹介する。

## 2 主な特徴

図 1 にシステム構成を示す。

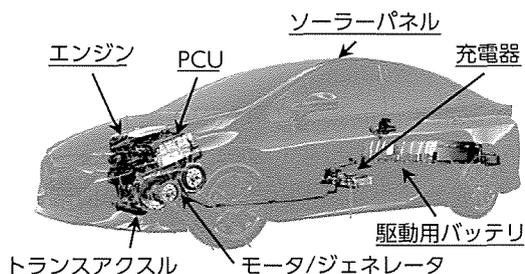


図 1 プラグインハイブリッドシステム

エンジンは、新型プリウスと同じ 2ZR-FXE を搭載しており、熱効率は 40% を達成している。

駆動用バッテリーシステムは、バッテリーセル数を旧型比で 1.7 倍の 95 セル、バッテリー容量を旧型比で約 2 倍の 8.8kWh まで向上させることで、EV 出力と EV 走行距離向上に大きく貢献した。また、新たにバッテリー昇温システムを採用し、低温時にもバッテリー温度を適温に保ち、EV 性能を確保した。

トランスアクスルは、EV 走行時にジェネレータを駆動用モータとして利用する、デュアルモータドライブシステムを新たに採用した。これにより、モータに加えて、ジェネレータを駆動用に利用する

ことで、EV 出力の大幅向上を実現している。

充電器は、低損失パワーデバイスの採用による常損失低減、新制御方式によるスイッチング損失低減にて、充電器効率を 89% から 95% へと向上させ、電費向上に貢献した。また、DC 急速充電も選択でき、ユーザーの充電ニーズに対応した。

ソーラー充電システムは、専用の小型蓄電池を設けることで、システム損失を低減し、駆動用バッテリーへの高効率な充電を実現した。停車時には、専用蓄電池にソーラー発電電力を蓄え、所定量を蓄えた後に駆動用バッテリーを充電することで、ソーラー充電システムの効率を向上させ、日当たり最大で EV 距離 6.1km 分のエネルギーを充電することが可能となった。

## 3 まとめ

新型プリウス PHV の主要諸元を表 1 に示す。

表 1 新型プリウス PHV の主要諸元

	新型 PHV	旧型 PHV
EV 距離 (JC08) (km)	68.2	26.4
EV 最高速 (km/h)	135	100
燃費 (km/L)	37.2	31.6
電費 (km/kWh)	10.54	8.74

これまでに実施した PHV 実証試験で得られた実走行データより求めた、EV 距離に対する EV カバー率（総走行距離に対する EV 走行距離の割合）より、旧型に対して、新型プリウス PHV は EV 距離を約 2.3 倍、EV 出力を約 1.8 倍にすることで、ユーザーの平均 EV カバー率を、旧型比 2 倍の約 60% とすることが期待される。

PHV は EV 走行を楽しむことができる上、燃費の良い HV 走行もできるため、EV 走行の航続距離を気にする必要がなく、高い環境性能を実現できる。新型プリウス PHV は、これまでよりさらに高い環境性能を実現できるため、本車両が普及することにより環境負荷低減に貢献することを期待する。

\*1 パワートレインカンパニー パワートレイン製品企画部  
\*2 パワートレインカンパニー EHV 電池設計部  
\*3 パワートレインカンパニー EHV 電力変換ユニット設計部  
\*4 パワートレインカンパニー 第 1 駆動・EHV 設計部  
\*5 先進技術開発カンパニー 電子制御基盤技術部

# 第 68 回自動車技術会賞 論文賞 インホイールモータを用いたばね下逆スカイフックダンパ 制御による乗り心地の研究

Research into Ride Comfort by Unsprung Negative Skyhook Damper Control Using In-Wheel Motors

勝山 悦生 \*1 大前 彩奈 \*1  
Etsuo Katsuyama Ayana Omae

## 1 まえがき

自動車のホイール内に駆動用モータを搭載したインホイールモータ (IWM) 車が提案されている。各輪を独立に駆動できるため、車両運動性能の向上も期待できる。しかしながら、ばね下質量の増加により、乗員が不快に感じる 4 ~ 8Hz 域の振動が悪化する。そこで、IWM の駆動力制御により、その振動を低減させる方法を検討した。その結果、ばね下の上下振動の情報を用いて制御することで、その帯域を効果的に制振できることを発見した。

## 2 技術概要

### 2.1 ばね下逆スカイフックダンパ制御法

従来制御法として代表的なものに、スカイフックダンパ制御がある。制御則がシンプルで効果も大きい。その効果は 1 ~ 2Hz のばね上共振周波数付近に限られており、4 ~ 8Hz は効果がないばかりか、制御の遅れの影響で若干悪化してしまう。

そこで、その悪化が生じる原因を解析したところ、ばね下の上下速度に比例した力の成分が影響していることを突き止めた。それを逆手に、ばね下の上下速度に比例した負の力を与えることで、4 ~ 8Hz 域の振動を低減させる制御法を考案した。図 1 の簡易車両モデルを用いて、路面入力に対する車体の上下方向加速度を計算した結果、本提案制御は狙いの周波数域において非常に効果的であることが確認できた (図 2)。

本制御は、ばね下を負の減衰係数のダンパでスカイフックすることに相当することから、ばね下逆スカイフックダンパ制御と命名した。

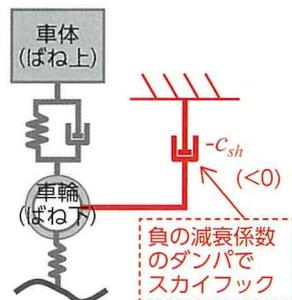


図 1 簡易車両モデル

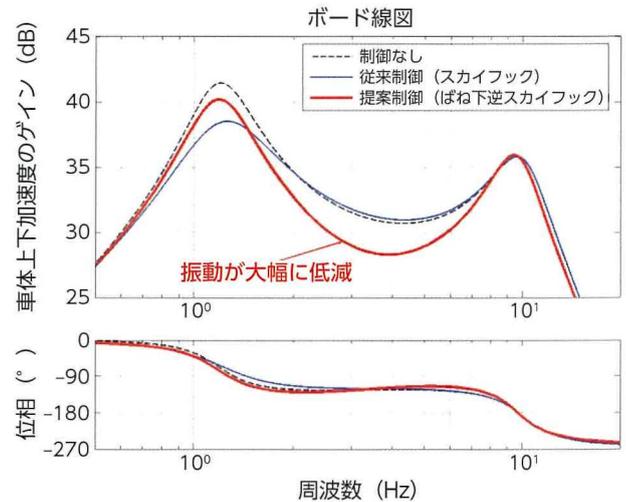


図 2 路面凹凸による車体の上下加速度

### 2.2 インホイールモータ車への適用

IWM の駆動により生じるサスペンション反力の上下方向成分をうまく利用すると、車体に働く上下力が駆動力配分で自由に制御できる。車両の速度や進路を乱すことなく、ロール、ピッチ、上下運動に本制御を適用するための各輪制御駆動力  $F_{xfl}$ ,  $F_{xfr}$ ,  $F_{xrl}$ ,  $F_{xrr}$  は、式 1 のように導出できる。

$$\begin{bmatrix} F_{xfl} \\ F_{xfr} \\ F_{xrl} \\ F_{xrr} \end{bmatrix} \approx -\frac{2c_{sh}}{\tan\theta_r} \begin{bmatrix} -\{v_p + (1-e)v_q + ev_z\} \\ -\{-v_p + (1-e)v_q + ev_z\} \\ v_p + (1-e)v_q + ev_z \\ -v_p + (1-e)v_q + ev_z \end{bmatrix} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $c_{sh}$  は制御減衰係数、 $\theta_r$  は後輪駆動反力傾角、 $v_p$ ,  $v_q$ ,  $v_z$  はばね下上下速度の左右差、前後差、平均値、 $e$  はピッチと上下の制御重み係数である。

これを 4 輪 IWM 車に適用することで、計算と同様に実車においても、狙いの周波数域が制振されることが確認できた。

## 3 むすび

乗員が不快に感じる周波数域の振動を効果的に低減する制御法を提案した。サスペンション制御装置を追加することなく、IWM の駆動力制御によりそれを実現した。

\*1 先進技術開発カンパニー 先進シャシー開発部

# 第 68 回自動車技術会賞 技術開発賞 高速燃焼とグローバル生産を可能にした 新レーザクラッドバルブシート技術

New Laser-Clad Valve Seat Technology Enabling High-Speed Combustion and Global Production

青山 宏典 \*1  
Hironori Aoyama

杉山 夏樹 \*1  
Natsuki Sugiyama

谷中 耕平 \*2  
Kohei Yanaka

鴨 雄貴 \*3  
Yuuki Kamo

大島 正 \*4  
Tadashi Oshima

## 1 はじめに

持続可能な社会の実現に向け、自動車のエンジンには大幅な燃費向上が求められている。一方で、走る愉しさを追求するため、高い動力性能も兼ね備える必要がある。それぞれの高い要求から、世界最高水準の熱効率と比出力を達成すべく、「高速燃焼」を基軸とした次世代エンジン群を開発した。

## 2 開発の狙い

高速燃焼は、EGR (Exhaust Gas Recirculation) 限界の拡大により、冷却損失やポンプ損失の低減を可能にする。また、EGR を使わない高負荷域においても、ノック改善による出力向上が期待できる。高速燃焼を可能にするためには、燃焼室内の乱れ強度を高める必要があり、ガソリンエンジンではタンブル流の形成が有効である。一方で、タンブル流の形成は吸気流入量の低下を招くため、その両立には限界があった。

本開発では、強いタンブル流形成と、相反する吸気抵抗低減の両立を目指し、レースエンジン等で採用されていたレーザクラッドバルブシート (LCVS) を活用した設計により、吸気ポート形状の革新にチャレンジした (図 1)。加えて、世界戦略エンジ



図 1 LCVS を採用した吸気ポート断面

ンに LCVS を採用するにあたり、①再生可能資源として普及の進むバイオエタノールへの対応など全世界での使用環境に対応できる優れた耐久性を有すること、②グローバル・大規模量産を可能とすることを開発の狙いとした。

## 3 世界トップクラスの高効率吸気ポート設計

シリンダヘッドのバルブが着座する部位には、耐摩耗性を確保するためにバルブシートと呼ばれる部品がある。従来は、あらかじめ成型したリング状の鉄系焼結部品を圧入し形成していたためにシート保持に必要な肉厚の確保等の理由から小型化できず、屈曲した吸気ポート形状設計を強いられ、吸気を効率よく燃焼室内に導くことができなかった (図 2)。

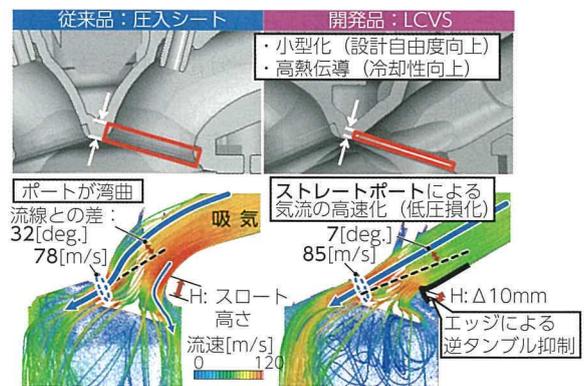


図 2 吸気ポート構造と吸気流線の比較

そこで、レーザクラッド法を用いて、耐摩耗性を有する銅合金粉末をアルミシリンダヘッド上に直接肉盛り形成する技術を採用した。この技術により、バルブシートの小型化が可能となり、高い気流速度を維持したまま吸気を燃焼室に効率よく導入することができる直線型吸気ポート (ストレートポート) の設計が可能となった。さらに、ポート下面のスロート部にエッジを設けることができるようにな

\*1 パワートレーンカンパニー 生技開発部

\*2 パワートレーンカンパニー 第 2 素材材技術部

\*3 先進技術開発カンパニー 第 1 材料技術部

\*4 株式会社 豊田中央研究所

り、気流を剥離させて逆タンブルを抑制できるようになった。この革新的吸気ポートによって、世界トップクラスの吸気効率（タンブル比 2.9，流量係数 0.49）を達成した（図 3）。

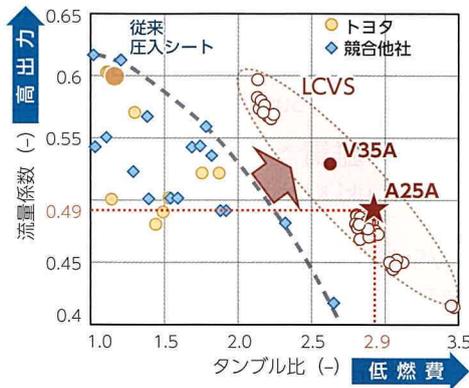


図 3 吸気ポート性能比較

## 4 LCVS 技術開発

### 4.1 多様な燃料に対応したシート材料

LCVS 用合金には、高速燃焼による高温高圧環境下での耐久性だけでなく、高エタノール含有燃料による腐食という厳しい使用環境下での耐久性も求められる。加えて、アルミ基材との溶着性や、部品形状の加工に必要な被削性も兼ね備える必要がある。これらの要求特性を満たすために、銅合金中に耐摩耗性を付与する硬質粒子を分散させた複合組織の形成を図った。レーザー肉盛りという極めて短時間の溶融 - 凝固過程で硬質粒子を均一分散させる手法として二液相分離を活用した。

包晶型の Cu-Fe 系合金に、液相中での Fe の含量を増加させる Mo を添加することで、二液相分離域 (L1+L2) が出現する（図 4）。この現象を利用し、耐熱銅マトリクス中への耐摩耗性硬質粒子の分散を可能にした Cu-Fe-Mo-Ni-Si の 5 元系合金を開発した。本合金により、新 LCVS の要求特性の確保を可能としている。

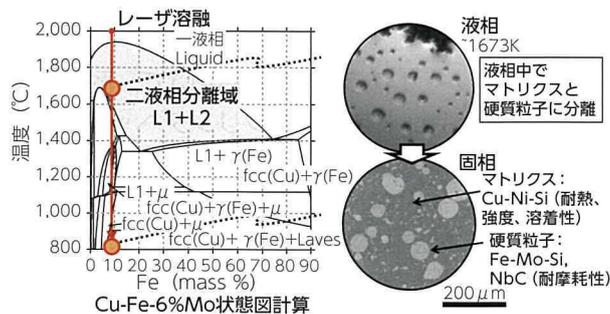


図 4 LCVS の組織と合金設計

### 4.2 大規模量産を可能にした生産技術

LCVS は、低融点なアルミ基材に高融点な銅合金を直接肉盛りし形成するため、基材が肉盛り層に希釈し易く、その制御が難しいなどの生産課題から国内の一部工場での小規模量産に限定されていた。

従来の LCVS 加工では、複雑な光学系を有するレーザービームや合金粉末供給ノズル側を固定し、対象部品を移動させることで、加工点を一定にして肉盛りを行う。そのため、大物部品への適応は設備の大型化を招く。そこで、新クラッド工法では、高効率で光学系の小型化が可能な半導体レーザーを採用し、レーザー光・粉末・シールドガスを一体で供給できる同軸ノズルによる斜方向への成形技術を開発した。これにより、シリンダヘッドに対してレーザービーム側を回転させる肉盛り工法を採用でき（図 5）、従来比で消費エネルギー 1/5 以下、設置スペース 1/3 以下を実現し、大規模量産を可能とした。

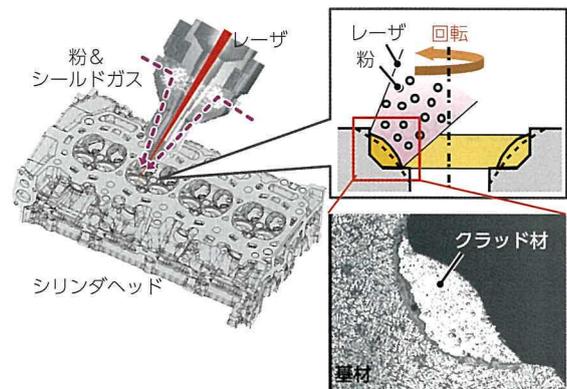


図 5 新クラッド工法の概要と肉盛り後の様子

## 5 まとめ

再生可能資源であるバイオエタノールに対しても高い信頼性を有する新合金と、高効率でロバスト性に優れた新工法を開発することで、さまざまな地域への普及を可能とした。レーザークラッドバルブシート技術を開発した。本技術によって、燃焼速度を飛躍的に高めた吸気ポート形状を具現化し、世界トップレベルの熱効率 40% 超と比出力 60kW/L の実現に大きく貢献した。

本技術は、2017 年より次世代エンジン群に搭載され、持続可能な社会への貢献を目指して世界展開していく予定である。

本論文は、下記発表済み論文の転載である。  
青山宏典ほか：高速燃焼とグローバル生産を可能にした新レーザークラッドバルブシート技術。自動車技術。Vol. 72, No. 7, 2018, P.10 - 11

# 第 68 回自動車技術会賞 技術開発賞

## シートモールドコンパウンド材料を適用した 自動車外板インナーの量産製品開発

Mass Production Development of Vehicle Shell Inner Parts Applying Sheet Molding Compounds

浦山 裕司\*1      北村 達朗\*2      安達 善之\*3  
Hiroshi Urayama      Tatsuo Kitamura      Yoshiyuki Adachi

岩野 吉宏\*4      馬場 元基\*5  
Yoshihiro Iwano      Motoki Baba

### 1 背景・目的

CO<sub>2</sub> 排出量削減に向け、車両軽量化を量産車で実現することは重要である。炭素繊維強化樹脂 (CFRP) は、鉄やアルミ等に比べ比強度・比剛性が高く、用途拡大を期待されている樹脂材料である。本開発では、低コスト・高生産性が期待できる Carbon-Sheet Molding Compounds (C-SMC) に着目し、プラグインハイブリッド車 (PHV) で、世界最軽量のバックドアを目指した。

### 2 材料開発

C-SMC は、一定繊維長にカットした炭素繊維をペースト状の樹脂中にランダム分散した材料である。それを熱プレスし、熱硬化性 CFRP となる。高生産性に応えるため、C-SMC の硬化時間を従来材よりも短い 2 分に設定した (図 1)。重合禁止剤の減量、金型温度の適正範囲を設定、さらに硬化剤の調整を行った。これらの最適処方により、硬化時間と性能を満足する速硬化材料を開発した。

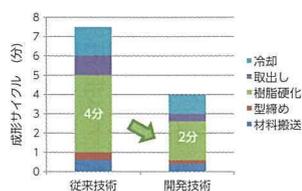


図 1 生産性比較



図 2 バックドア構成部品

### 3 部品構造設計

バックドアの構成は、インナー骨格は C-SMC、アウターは変性ポリプロピレンを採用し、鉄リン

フォース (R/F) レスの構造とした (図 2)。従来の金属バックドア同等の強度・剛性を確保するため、CFRP による閉じ断面骨格を採用し、樹脂パネルを R/F として活用した。CFRP 同士の間には構造用接着剤を採用し、連続的な接合にすることで、高いドア剛性を確保した。インナー骨格は従来の 5 部品を一体とし、部品点数を削減した。質量とコストの低減に成功し、超軽量バックドアを実現した。

### 4 生産技術開発

従来技術は手作業中心の労働集約工程であったが、随所に自動化技術を導入し、生産性が飛躍的に向上した。その工程概要を図 3 に示す。(1) 超音波カッターで、部品形状に合わせて材料をカットした。(2) 熱プレスは、材料の型への投入と製品取出しをロボットで搬送し、(4) 穴あけは、エンドミル刃具で多種類の穴を加工、(5) 部品組付は、ハンドリング装置に製品を持たせて、接着剤の塗布、治具へのセットと取り出しを行った。

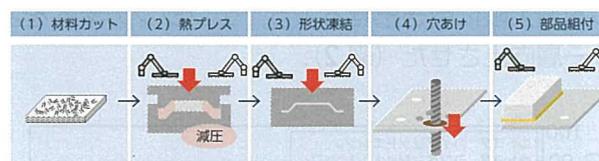


図 3 CFRP 樹脂バックドアインナー  
アSEMBリ工程

### 5 まとめ

材料・工法・構造の三位一体の革新的開発により、月産 5,000 台規模で、世界最軽量の樹脂バックドアを開発した。同意匠のアルミバックドア比で、約 40% の軽量化を達成した。これを、ラグジュアリーカーのドアパネルと、ラゲージドアのインナーパネルにも展開したことで、材料の汎用化に向けた一歩を踏み出したと考える。

\*1 先進技術開発カンパニー 第 1 材料技術部  
\*2 MS Company MS 成形塗装生技部  
\*3 MS Company BR コンパクト SUV 製品化室  
\*4 先進技術開発カンパニー 試作部  
\*5 TOYOTA DAIHATSU ENGINEERING & MANUFACTURING CO., LTD.

# 第 68 回自動車技術会賞 技術開発賞 低燃費・高出力を高次元で両立させた 新燃焼コンセプトエンジン

Development of Highly Fuel Efficient and High Power Engine Adopting New Combustion Concept

秤谷 雅史\*1  
Masashi Hakariya

戸田 忠司\*2  
Tadashi Toda

坂井 光人\*3  
Mitsuto Sakai

川島 孝弘\*4  
Takahiro Kawashima

坂田 邦彦\*5  
Kunihiko Sakata

## 1 はじめに

将来のエネルギー・環境問題を解決し、サステイナブルな社会の実現に向けてモビリティの動力電動化が進むなか、その過程において、内燃機関は、大幅な燃費向上とクリーンな排気を実現しなくてはならない。また一方で、ユーザーの期待を超える「fun-to-drive」を実現するには、高い出力性能も兼ね備える必要があり、今回はそれらを両立させた新型 2.5L ガソリンエンジンを開発した。

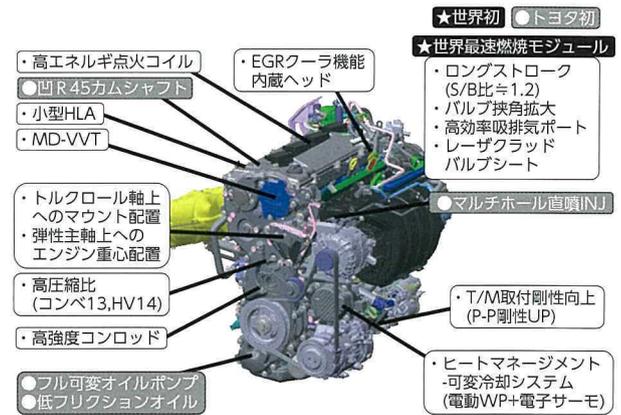


図 2 主要技術

## 2 開発の狙い

本エンジンは、トヨタ自動車がかつてから提唱している高速燃焼技術をさらに進化させることにより、最新ハイブリッドエンジンと同等の最大熱効率 40%と、TOP クラスの出力性能 60kW/L の両立を開発目標とした（図 1）。また、将来への発展性・生産性を考慮したベースエンジンとして、基本骨格から見直し、さまざまな投入技術がそのポテンシャルを最大限に引き出せるよう、エンジンの素性をより一層向上させた（図 2）。

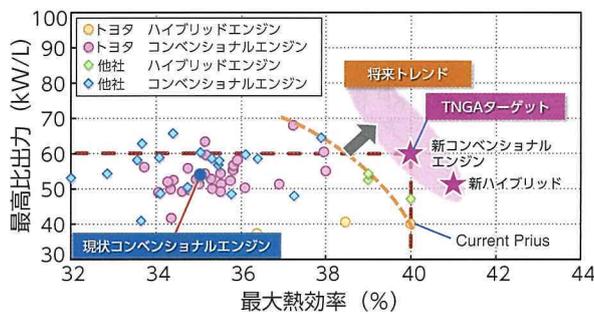


図 1 比出力と熱効率トレンドと目標

## 3 技術の内容

一般的に、トレードオフの関係にある熱効率と出力性能を、一層高い次元で両立させるためには、高い耐ノッキング特性と高 EGR (Exhaust Gas Recirculation) 下で、安定した燃焼を作る筒内流動の形成が重要となる。乱れと流量の相反する性能を両立する、高タンブル・高流量インテークポート実現のため、基本骨格としてロングストローク化した。吸排気弁を最適配置し、さらに吸気側には、量産エンジンであるにも関わらず、レーザクラッドバルブシートを採用した。従来のポート性能トレードオフラインから大きく改善するポート設計が可能となり、本エンジンの性能目標を得られる諸元を選定した（図 3, 4）。

\*1 パワートレーンカンパニー 第 3 電動パワートレシテム開発部

\*2 パワートレーンカンパニー エンジン設計部

\*3 トヨタ自動車研究開発センター（中国）有限公司

\*4 パワートレーンカンパニー パワートレーン製品企画部

\*5 CV Company CVZ



図3 吸気ポート詳細

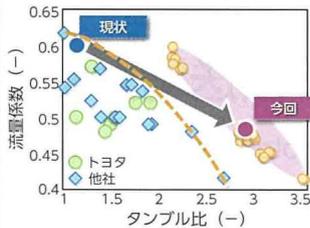


図4 吸気ポート性能

また、ピストン頂面形状は、図5に示すように、成層キャビティを廃止することで、圧縮行程における筒内の乱れ強度を高圧縮比下でも維持させた。

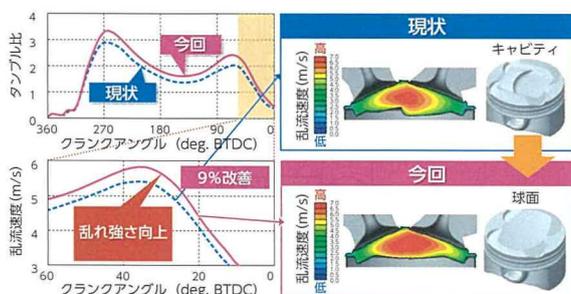


図5 ピストン頂面形状と乱れ強さ比較

冷却構造・システムについても大幅に見直し、高圧縮比化による耐ノッキング性の悪化を抑制するため、エンジン回転数に依存せずに流量制御できる電動ウォーターポンプを採用した。電力消費量にも配慮し、ポンプ小型化のため、冷却通路およびシステム全体での圧力損失低減と、効率的な冷却性の向上を図った。特に、シリンダヘッドにおいては、高温になり易い排気弁間に集中的に流す構造と、ウォータージャケット中子断面積を従来比20%低減させることで、従来の約1/2の流量でも熱伝達係数を従来比20%向上させた(図6)。低回転から耐ノッキング性を著しく向上でき、高速燃焼をさらに進化させることができた。

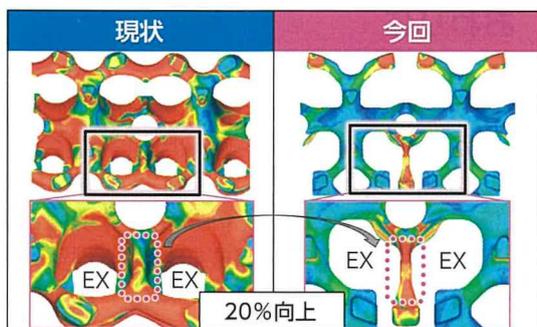


図6 ウォータージャケット構造と熱伝達率比較

## 4 開発の成果

高速燃焼技術の進化や新技術アイテムの採用により、従来エンジンと比較して、低回転から高回転まで全域に渡って大幅に性能を向上させ、実機エンジンにおいて最高出力151kW(比出力60kW/L)を達成した(図7)。燃費についても、最大熱効率40%を達成するとともに、広範囲に渡り熱効率が向上し、ハイブリッド用では熱効率41%を達成した(図8)。

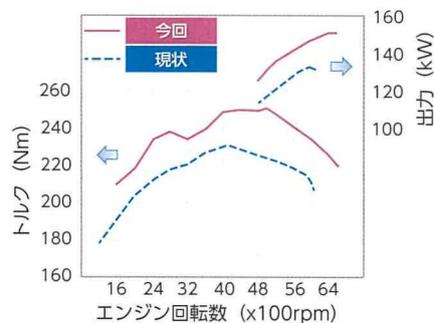


図7 エンジン出力とトルクカーブ

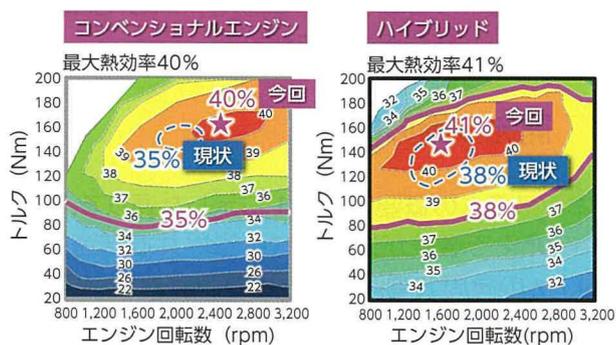


図8 熱効率マップ比較

## 5 まとめ

これまで述べてきた最新技術を惜しみなく投入することで、世界トップレベルの最大熱効率と出力性能を達成し、トヨタの次世代ガソリンエンジンにふさわしい仕上がりを実現した。

今後、本エンジンを皮切りに、高速燃焼技術に代表されるTNGA (Toyota New Global Architecture) コンセプトを採用したエンジンシリーズを順次展開する予定である。地域のさまざまなニーズに応えるために、そしてユーザーのために。

# 自動車技術会 2017年春季大会学術講演会 優秀講演発表賞 走行中ワイヤレス給電における伝送電力解析手法の研究

Research into Power Transfer Analysis Methodology for Dynamic Wireless Charging

前村 雅人\*<sup>1</sup> 辻 公壽\*<sup>2</sup> 鈴木 智清\*<sup>1</sup>  
Masato Maemura Kimitoshi Tsuji Tomokiyo Suzuki  
中村 剛志\*<sup>3</sup> 吉崎 泰直\*<sup>4</sup> 上地 健介\*<sup>5</sup>  
Tsuyoshi Nakamura Yasunao Yoshizaki Kensuke Kamichi

## 1 はじめに

電動車の普及には、航続距離の短さ、充電の労力・時間の長さ、そして車両価格の高さという3つの主要な課題があり、解決策として、バッテリー容量の増加や急速充電の充実などの手段が主に開発されている。本稿は、走りながら給電することでクルマに貯めるべきエネルギーを減らすという、別のアプローチによる“走行中ワイヤレス給電”により、電動車の普及を図るチャレンジである。

今回、コイルに流した電流により発生する磁界を用いたワイヤレス給電において、物事の本質を捉えて見通し良くシンプルに表現する、“1D-CAE”の概念を用いた解析手法を紹介する。

## 2 開発技術の概要

本システムの概要は、図1に示した通りで、SAEのJ2954で議論が進められる磁界共振結合方式、85kHzの高周波電源、共振用コンデンサ、ワイヤレス電力伝送用コイル、受電後の整流器(AC→DC変換)、車両の電気負荷の構成に基づき、検討した。次に、解析モデル化のプロセスと結果を示す。

1. 送受電コイル形状モデル化
2. 電磁界解析による移動量と結合係数の関係式取得(図2)
3. 電力伝送の電磁気回路モデル化
4. 走行負荷算出用の移動体モデル化
5. 走行中ワイヤレス給電システムのモデル化(図3, 4)

1および2は有限要素法による3次元電磁界解析を、3～5は1D-CAEを、それぞれ用いた。

なお、本検討に用いたモデルは、MBD開発への活用を考慮し、標準化言語VHDL-AMSを用いて記述し、汎用性・拡張性を付与した。

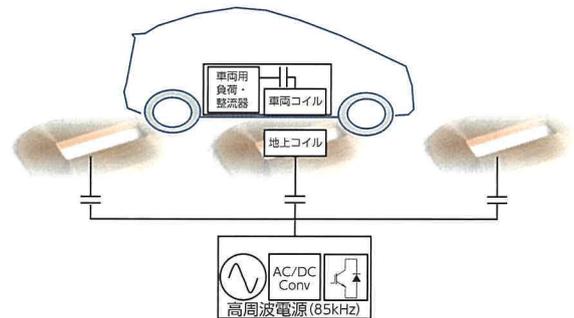


図1 走行中ワイヤレス給電のシステムイメージ

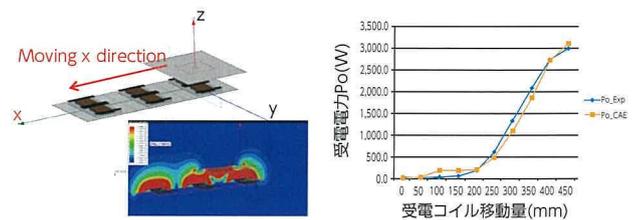


図2 コイル移動と磁界分布 図3 比較結果(解析と実験)

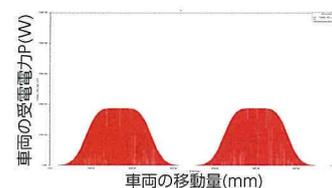


図4 コイル移動時の受電電力(2つの地上コイル通過時)

## 3 おわりに

磁界の発生源である、インフラから移動体の消費負荷までを、連続的に計算できる解析手法を紹介した。システムの構成要素を1次元モデルに集約することにより、電力伝送回路の主要設計項目となる電磁気回路特性について、構成要素間の相互作用を議論できるようになることから、今後、移動が等価インダクタンスに与える影響や、最大効率を実現するための制御手法検討などへ応用する用途が考えられるため、引き続き開発中である。

\*1 未来創生センター S- フロンティア部  
\*2 先進技術開発カンパニー 先進プロジェクト推進部  
\*3 先進技術開発カンパニー 先進技術統括部  
\*4 先進技術開発カンパニー 電子制御システム開発部  
\*5 パワートレーンカンパニー パワートレーン製品企画部

# 自動車技術会 2017年春季大会学術講演会 優秀講演発表賞 新燃焼コンセプトと制御技術による燃費と Fun to Drive の両立

New Combustion and Powertrain Control Concepts for Achieving both Fun-to-Drive Dynamic Performance and Better Fuel Economy

吉田 享史\*1 Takashi Yoshida  
永崎 岳人\*1 Taketo Nagasaki  
高橋 毅\*2 Tsuyoshi Takahashi  
板橋 秀\*1 Shigeru Itabashi  
山口 正晃\*1 Masaaki Yamaguchi  
村瀬 栄二\*3 Eiji Murase

## 1 まえがき

エネルギーセキュリティや地球規模の環境変化への対応として、自動車用エンジンには、燃費のさらなる向上と、各国の排気ガス規制への適用が求められる。新型車両の高い開発目標を達成するため、基本骨格を一から見直し、SULEV30/EURO6c 規制に適合、量産トップとなる、熱効率 40% と比出力 60kW/L 以上を実現した、TNGA (Toyota New Global Architecture) 2.5L エンジンを開発した。

## 2 燃焼コンセプト

TNGA エンジンでは、これまで同様に高速燃焼を基本コンセプトとしている。筒内乱れと燃焼速度には強い相関があり、熱効率 40% が実現可能な乱れ目標値を設定した。乱れは、燃焼室を構成する代表寸法と物理指標により、精度よく予測可能なことを確認した。この設計手法を用いて、基本骨格の見直しと、図 1 に示す改良により、トレードオフの関係にある高い熱効率と比出力目標を両立する、高効率な燃焼を実現した。また、触媒暖機方式の変更により、暖機性確保と PN 低減を両立させた。

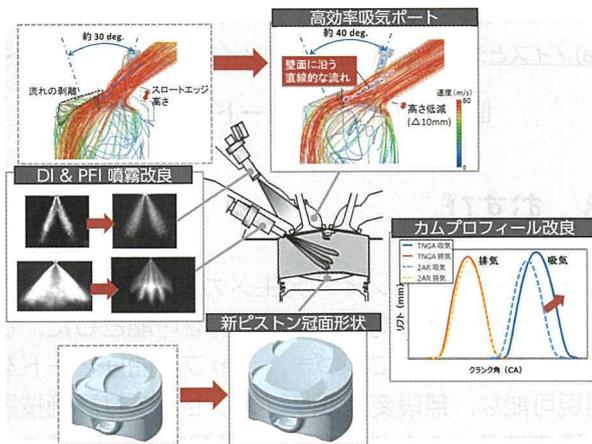


図 1 TNGA エンジン改良

\*1 パワートレーンカンパニー 第 3 電動パワートレシステム開発部  
\*2 パワートレーンカンパニー 第 2 電動パワートレシステム開発部  
\*3 パワートレーンカンパニー パワートレーン製品企画部

## 3 実機検証結果

図 2 に、燃焼確認結果を示す。目標乱れの実現により、従来仕様に対して大幅に燃焼速度が向上していることが確認された。また、高速燃焼により、燃焼バラツキが抑制され、ノッキングが改善し、CA50 が進角可能となった。結果、高タンブル化に伴う体積効率の低下を上回る性能向上効果を得られた。

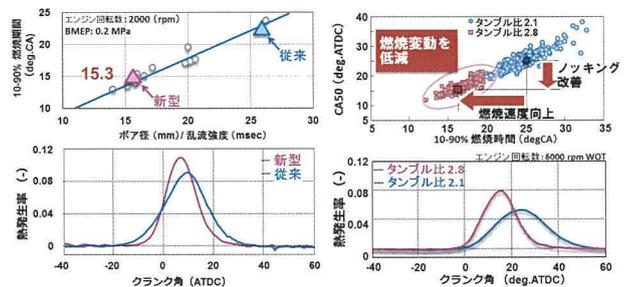


図 2 部分負荷 (左) 全負荷 (右) 燃焼確認結果

## 4 まとめ

- 高速燃焼をベースに、基本骨格から見直し、最高熱効率 40% と比出力 60kW/L の両立を可能とした。
- 触媒暖機戦略と、DI および PFI の噴霧を見直し、SULEV30/EURO6c 規制に適合した。
- 日常走行においても走りの目標を定義し、全負荷加速性能と Fun to drive を両立した。

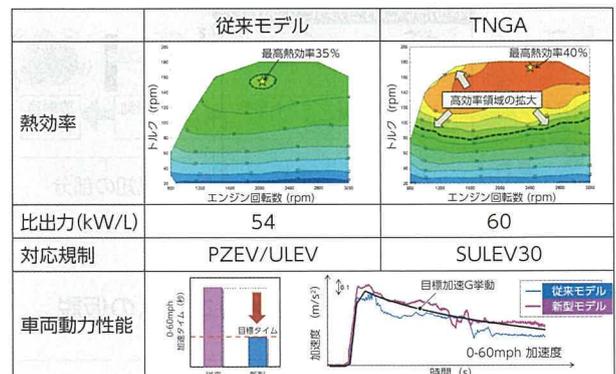


図 3 エンジン、車両性能まとめ

# 自動車技術会 2017 年秋季大会学術講演会 優秀講演発表賞 CVT ベルトノイズ発生源見える化によるメカニズム解析

Analysis of CVT Belt Noise Mechanism by Measuring Vibration Source

林 二郎<sup>\*1</sup>  
Jiro Hayashi

森本 直<sup>\*2</sup>  
Tadashi Morimoto

武田 泰範<sup>\*3</sup>  
Yasunori Takeda

三輪 裕一<sup>\*2</sup>  
Yuichi Miwa

## 1 まえがき

CVT (Continuously Variable Transmission) 搭載車の静粛性向上にとって、ベルトノイズは永年の開発課題であるが、従来、ノイズ発生メカニズム解明が不十分であったため、発生源である無段変速部への根本対策が打てず、ユニットケースでの試行錯誤が主であった。本研究では、ノイズ発生メカニズムの解明および、ノイズに寄与する振動モードを再現可能な無段変速部サブアッセンブリ評価技術を確認するとともに、CAE 予測精度の検証を進め、ノイズ性能開発フロントローディングによる CVT 性能向上および開発期間・費用の低減手段確立を目的とした。

シーブ振動のみ検出可能とした。回転方向は、シーブ直近のシャフトをトルク計化することで、設備トルク計では減衰して検出困難であった微小回転変動を、トルク変動として検出可能とした。

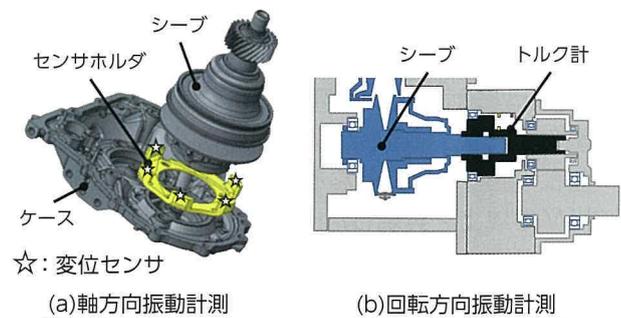


図 2 開発したシーブ振動計測システム

## 2 研究の内容

ノイズ発生メカニズムとして、ベルトがシーブに噛み込む際に発生する強制力がシーブを振動させ、それがシャフト、ケースへと伝達し、放射音が発生することが分かっているが、ノイズに寄与の高いシーブ、シャフトの振動モードが未解明であった (図 1)。そこで、無段変速部の極微小振動を実機実働状態で計測する技術を開発した (図 2)。軸方向振動は、センサーホルダを低剛性化することで、ケースからセンサに伝達される高周波振動を減衰させ、

開発した計測技術を用いて、ノイズに寄与の高い振動モードを解析した結果、シャフト曲げモードを伴うシーブ軸方向振動がノイズの主要因であることを初めて解明した (図 3)。

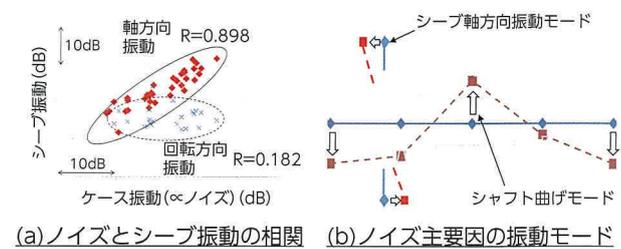


図 3 シーブ振動モード解析結果

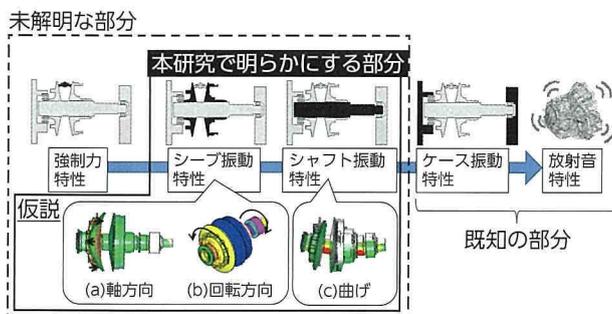


図 1 ベルトノイズ発生メカニズムの仮説

## 3 むすび

本研究により、ノイズ発生メカニズムを解明し、ノイズ性能向上に向けた設計検討を可能とした。さらに、メカニズムに基づき、シャフト曲げモードを再現可能な、無段変速部サブアッセンブリ評価技術を確認するとともに、CAE で予測した振動モードが実測と良く一致することを確認した。これらの技術で、開発フロントローディングを加速していく。

\*1 パワートレーンカンパニー 計測技術部

\*2 パワートレーンカンパニー パワートレーンデジタル改革部

\*3 パワートレーンカンパニー 第 3 駆動・EHV 設計部

# 自動車技術会 2017 年度秋季大会学術講演会 優秀講演発表賞 トランスミッションにおける歯元歪予測手法

Improved Prediction Methodology for Tooth Root Strain in Transmission

津田 利昭\*<sup>1</sup>      額田 高德\*<sup>1</sup>      堀内 美穂\*<sup>1</sup>  
Toshiaki Tsuda      Takanori Nukata      Miho Horiuchi  
廣田 智行\*<sup>2</sup>      山口 哲哉\*<sup>2</sup>      関山 光晴\*<sup>2</sup>  
Tomoyuki Hirota      Tetsuya Yamaguchi      Mitsuharu Sekiyama

## 1 はじめに

トランスミッションの開発では、信頼性確保と軽量化を両立させるために解析技術が活用されている。歯車の疲労強度予測においては、歯当たりへの影響が大きい歯車支持系の変形（ミスアライメント）を精度良く予測することが重要である。

本研究では、ベアリング等の歯車支持系のモデル化を改善することにより、ミスアライメントと歯元歪（図1）を精度良く予測できることを明らかにする。

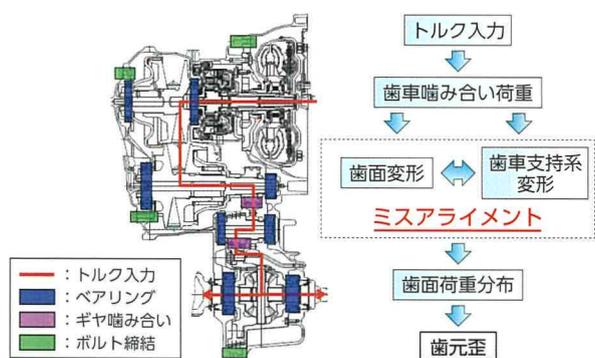


図1 歯元歪の発生メカニズム

## 2 解析モデルの構築

ベアリング、ボルト、歯車は、ミスアライメントへの影響が大きいことが経験的に分かっているが、従来はモデル化が複雑になるため、簡易なモデルを用いていた。本検討では、これら機械要素の荷重伝達を正確に再現することで、ミスアライメントを精度良く再現し、歯元歪を精度良く予測することを目指す。まず、図2に示すように、詳細な形状と部品間の接触状態を再現したモデルを構築した。このモデルをトランスミッションの全体モデルに適用すると、計算規模が増加して計算ができないといった問題や、計算に時間がかかり過ぎるといった問題が生じる。今回は、サブモデル化手法を適用することで、これらの問題を回避した。

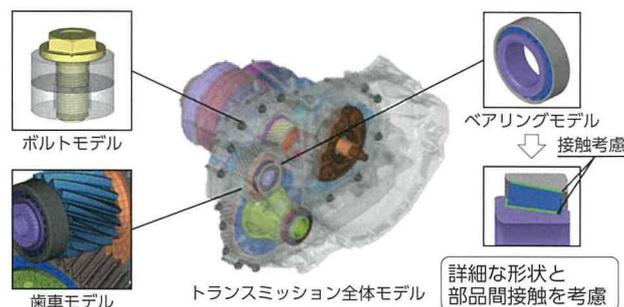


図2 詳細モデルの構築

## 3 解析モデルの妥当性確認

新手法の妥当性を確認するため、トランスミッションを用いて歯車支持系の変位と歯元歪を計測し、解析結果との比較・検証を行った（図3、4）。その結果、新手法を適用することで予測精度が向上することを確認し、新手法の妥当性を確認した。

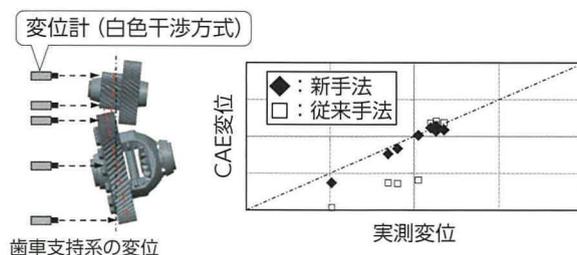


図3 歯車支持系の変位の比較

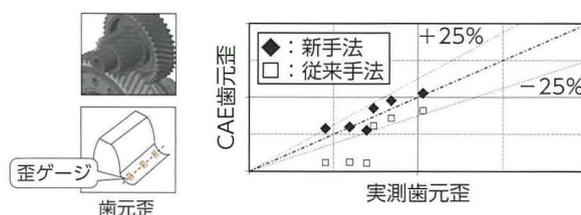


図4 歯元歪の比較

## 4 むすび

本研究により、高精度な歯元歪予測が可能となった。今後は、本手法を用いることによって、トランスミッションの軽量化に貢献したい。

\*1 パワートレーンカンパニー パワートレーンデジタル改革部

\*2 パワートレーンカンパニー 計測技術部

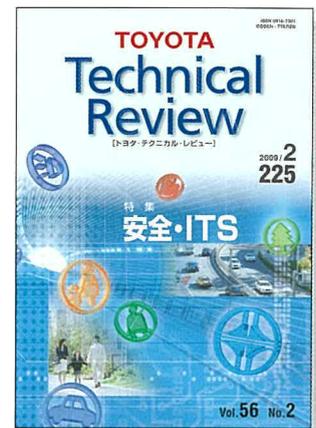
# Back Number Index



**Vol.55 No.2** (2007年)  
特集:レクサスの品質



**Vol.56 No.1** (2008年)  
特集:環境・エネルギー



**Vol.56 No.2** (2009年)  
特集:安全・ITS



**Vol.57 No.1** (2010年)  
特集:プリウス



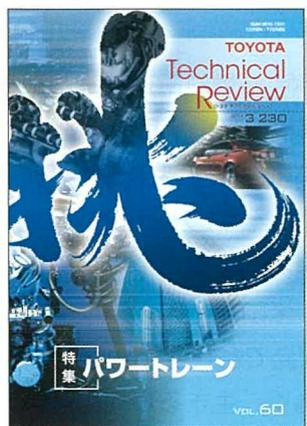
**Vol.57 No.2** (2011年)  
特集:次世代電池とその活用



**Vol.58 No.1** (2012年)  
特集:日本独創



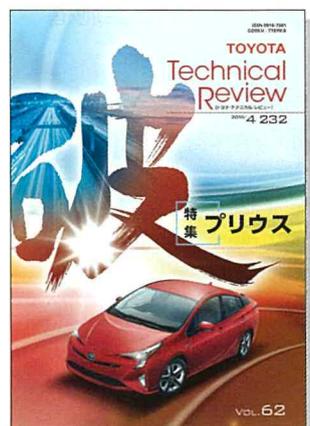
**Vol.59** (2013年)  
特集：生産技術



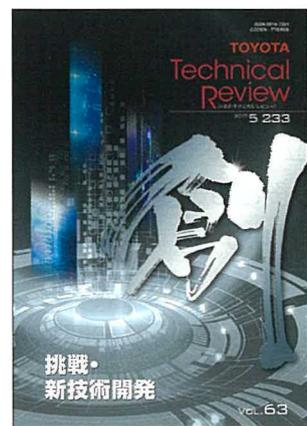
**Vol.60** (2014年)  
特集：パワートレーン



**Vol.61** (2015年)  
特集：MIRAI  
第2特集：ITS・高度運転支援



**Vol.62** (2016年)  
特集：プリウス



**Vol.63** (2017年)  
挑戦・新技術開発



**Vol.64** (2018年)  
特集：TNGAパワートレーン

定価：1,944円 (本体：1,800円)

※ 英文版も販売しております。定価：3,024円 (本体：2,800円)

発売元：(株) オーム社 Tel: (03) 3233-0641

[https://www.ohmsha.co.jp/magazine/partners\\_magazine.htm](https://www.ohmsha.co.jp/magazine/partners_magazine.htm)

いつも TOYOTA Technical Review をご愛読いただき誠にありがとうございます。TTR 第 65 巻通算 235 号をお届けします。

今回のテーマは、「将来の電池技術 ～燃料電池と蓄電池」です。たいへん忙しい時期にご協力くださった執筆者のみなさん、原稿取りまとめをしてくださった方に深く感謝申し上げます。

数年前より、自動車業界は 100 年に一度の大変革時代に突入したと言われています。GAFA を筆頭とする海外の巨大 IT 関連企業や、スタートアップと呼ばれる超先進的な技術をもったベンチャーが自動車業界に参入し、世界の自動車業界地図は大きく塗り替えられようとしています。電池に関連する領域でいえば、米国加州の ZEV、中国の NEV に関する規制など、各国の規制が厳しさを増すなかで、電池開発で各社激しく凌ぎを削っています。

トヨタも、勝つか負けるかではなく、生きるか死ぬかの瀬戸際の闘いを繰り広げながら、モビリティカンパニーに生まれ変わろうとしています。

本年は、「平成」が終わり、「令和」へと元号が変わりました。昭和の終わりの TTR をひも解いてみると、そこには東京モーターショーに出展したトヨタの電気自動車「EV-30」の紹介記事がありました。最高速度 43km/h、一充電走行距離 165km、そして気になる電池は「亜鉛-臭素電池」でした。また、インバーター、チャージャー、DC/DC コンバーターを一体化し、PCU として搭載したのは、この「EV-30」が世界初とのこと。平成の終わりに特許実施権を無償で提供した PCU の原点がここにありました。

今後も、読者の皆さんのお役に立てるよう、誌面の充実にも努めてまいります。今後ともご愛読いただきますよう、お願い申し上げます。

(発行人：米村)



## TOYOTA Technical Review Vol. 65

© 2019 TOYOTA MOTOR CORPORATION, Printed in Japan  
(禁無断転載)

発行所 トヨタ自動車株式会社  
開発支援部  
〒471-8572 愛知県豊田市トヨタ町1  
(0565) 28-2121 (代表)

発行人 米村 耕一  
編集 株式会社トヨタエンタプライズ  
トヨタ事業所 業務サポート室 小坂 拓

印刷所 笹徳印刷株式会社  
〒470-1196 愛知県豊明市栄町大脇7番地

発売元 株式会社 オーム社  
(03) 3233-0641 (代表)  
<https://www.ohmsha.co.jp>

発行 2019年8月23日



「月小学校で、皆既月食」

皆既月食は、地球の影に月がすっぽり入ってしまう現象

2018年1月31日 愛知県東栄町月地区 月小学校跡にて撮影

奥三河☆星空の魅力伝える会 平野 宗弘



TOYOTA  
Technical  
Review

[トヨタ・テクニカル・レビュー]

2019/8  
VOL. 65 235

発売元 株式会社 オーム社  
定価 1,944円(本体1,800円)