

燃料電池自動車用高出力電気二重層キャパシタセルの開発

Development of High-power Electric Double-layer Capacitor for Fuel Cell Vehicle

沖 尚 彦*
Naohiko OKI
池 尾 充*
Mitsuru IKEO

松 本 謙 治* 佐 藤 健 児*
Kenji MATSUMOTO Kenji SATO
松 本 康 弘* 安 部 直 行*
Yasuhiro MATSUMOTO Naoyuki ABE

要 旨

燃料電池車用蓄電デバイスとして電気二重層キャパシタを開発した。本キャパシタは燃料電池乗用車Honda FCXに搭載され2002年12月市場に投入された。基本構造は円筒ケースに電極巻体を収納するタイプであるが、(1)巻体端部のアルミはくをU字溝を放射状に配した集電板に押付けて溶融接合する構造と、(2)集電板中央の端子とケースおよびケースカバー中央の孔とをかん合後、溶接する構造とを採用することによって、電極の内部充てん率86%、接続部抵抗0.05 mΩ以下を達成した。このパッケージング構造により、キャパシタセル単体として世界トップレベルの出力密度1500W/kg以上、エネルギー密度3.9Wh/kgの単セル性能が得られた。耐久性については、搭載車両と同等以上の寿命を確保している。

ABSTRACT

An electric double-layer capacitor has been developed as an energy storage device for a fuel cell vehicle. This capacitor has been utilized in the Honda FCX fuel cell vehicle marketed in December 2002. The capacitor features a rolled electrode housed in a cylindrical case. The aluminum foil at the sides of the electrodes is welded to collector plates with radial U-shaped grooves; the structure is welded together after alignment of the terminals at the center of the collector plates with the holes in the center of the case and case cover. This configuration has enabled the achievement of a charging rate of 86% in the electrode and a connection resistance of less than 0.05 mΩ. Due to this packaging the unit displays the world's highest level of performance for a capacitor cell, with a specific power density of more than 1500W/kg and a specific energy density of 3.9Wh/kg. Tests show that the longevity of the capacitor is equivalent to or greater than that of the vehicle in which it is fitted.

1. まえがき

Hondaでは環境への配慮から、自動車の排出ガス低減を目的に1999年にIMA(Integrated Motor Assist)システムを搭載したINSIGHT⁽¹⁾を発売し、2002年にはCIVIC Hybrid⁽²⁾を発売している。いずれも車載用蓄電デバイスとしてニッケル水素化物電池(以下 Ni-MH)が採用された。

一方で、将来のゼロエミッション自動車として期待の大きい燃料電池乗用車 Honda FCX(以下 FCX)を2002年12月に実用化し、蓄電システムとして電気二重層キャパシタ(以下キャパシタ)が搭載された。

本稿ではFCXに搭載されたキャパシタセルの構造技術とその性能について説明する。

*和光基礎技術研究センター

2. 二重層キャパシタの原理・特徴

電気二重層とは、異なる二つの固液界面において、正負の電荷が非常に短い距離を介して配列、分布したものであり、電極が正の電荷を帯びている場合には、溶液中の負のイオンが配列し、電荷を補償する。

Fig. 1 にキャパシタ充放電の概略を示す。キャパシタの特徴は、容量発現機構が電極材である活性炭への正(または負)イオンの物理吸着現象であることから化学電池に比べて内部抵抗が小さく、繰り返し使用に対する耐久性が優れることである。化学反応を伴わないことから、低温から高温まで環境温度に対する適用性も高い。さらに、環境管理が必要とされる重金属、酸、アルカリ等の材料を使用しない点があげられる。

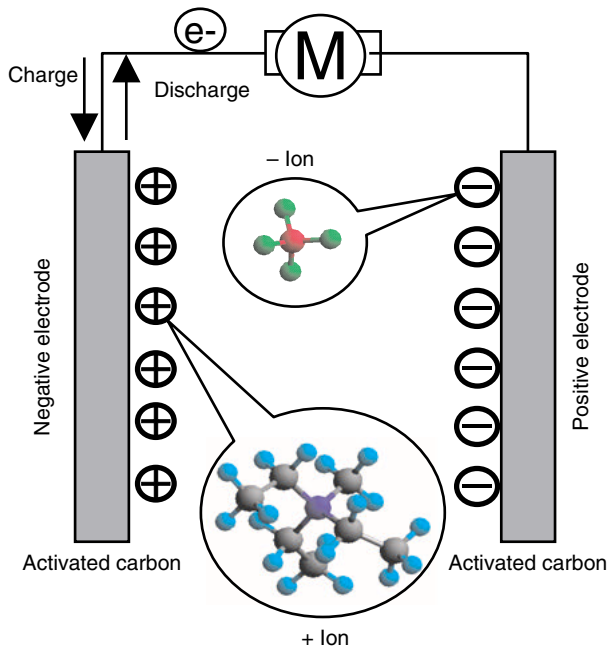


Fig. 1 Schematic illustration of electric double-layer capacitor

一方、化学電池に対して蓄電できる容量が大幅に劣るといふ課題があるため、実用化の面では化学電池に遅れを取っているのが現状である。

Fig. 2 にキャパシタセルの定電流放電波形を示す。放電によりセル電圧は直線的に低下する。この特性は充放電可能電圧の幅が広いことを意味しており、電圧調整ユニット無しで燃料電池の電圧に追従することが可能である。

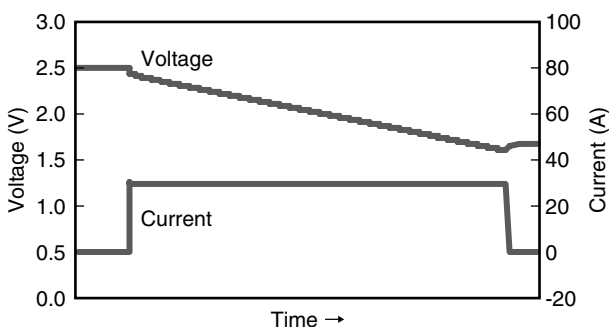


Fig. 2 Discharge curve of Honda Ultra capacitor

3. 開発のねらい

燃料電池車キャパシタシステムの数値目標から、セル目標性能を直流抵抗：2.5mΩ、静電容量：1350F と設定した。

これを達成するために、耐振動性などの信頼性を確保しつつ、以下二つの検討を行った。

- 1) キャパシタの特徴である低抵抗をセル内接続構造でも確保するため、電極体(以下、電極巻体)から端子まで

の非蓄電部の導電接続部抵抗を 0.05mΩ以下にする。

- 2) 化学電池に比べると低いエネルギー密度を可能な限り高めるため、蓄電機能を担う電極をセル内に最大限に充てんし、非蓄電部である集電接続構造に必要な体積を極小化する(電極充てん率の向上：80%以上)

4. 開発のコンセプト

4.1. セル形状の考え方

従来のキャパシタ構造を大別すると、コインタイプの小型キャパシタを除き二つのタイプに分けられる。一つは Fig. 3 に示す角形ケース、電極を積層したタイプであり、他方は Fig. 4 に示した円筒ケース、電極を巻いたタイプである。

角形においては、抵抗低減手法としての集電リード幅を拡大することが考えられるが、電極幅の 1/2 以上となることは無いという制約があり、集電部抵抗は 0.05mΩ以下にする目標を達成できない。平面方向で四面ケースと絶縁するクリアランスが必要なため、充てん率については56%となり大きな向上は望めない。よってケース形状は円筒形を選択した。

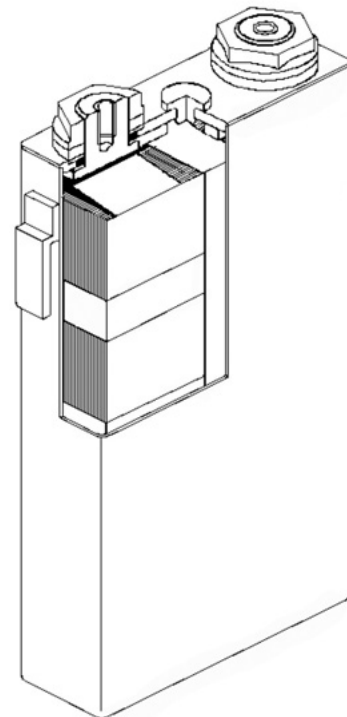


Fig. 3 Rectangular type

4.2. 集電構造の考え方

円筒形セルの集電構造にも種々のタイプがある。集電リードを取出すタイプでは端子と円筒状に巻かれた電極巻体(Rolled electrode)をつなぐタブの長さを大幅に短縮することが困難であり、低抵抗、充てん率向上を実現するためには集電構造の新たな検討が必要であると判断した。

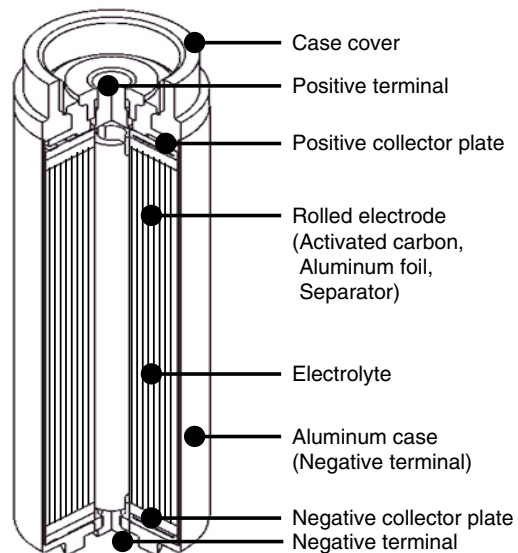


Fig. 4 Photograph and cutaway view of Honda Ultra capacitor

4.3. 充てん率向上の考え方

セル構造体としての電極充てん率の定義は、ケース内空間の利用に主眼を置き、ケース内長に対する電極巻体幅の比を充てん率とした。Fig. 4に示したケースにおいて、集電構造部に要する寸法の短縮がケース内空間に充てんした電極充てん率向上の鍵となる。そこで集電構造部の設計においては、集電板をケースと端子へ直接接続し、集電構造容積の最小化をはかる検討を行った。

5. 構造設計検討

5.1. セル構造

開発したセル外観、構造を Fig. 4 に示す。円筒状にセパレータを介して正負極が交互に巻かれた電極巻体には、正負イオンを溶解した電解液が含浸されている。製造時、通常使用時、万が一の事故が起きた時の安全性を考慮して、四級アンモニウム塩をプロピレンカーボネート溶媒に溶かしたものを電解液として選択した。電極巻体の両端には集電板が接続され、その集電板に形成された端子をケースとケースカバーの端子部に直接接続した。セルは車載用締結モジュール構造に合わせ、密封機能と正負極端子保持絶縁機能を兼ね備え、セル固定保持用ネジを設けたケースカバーと、底面に締め付け用工具受け形状を配置したケースとを溶接接合した。

5.2. 集電部の設計と接手法

5.2.1. 集電板形状

集電板と電極巻体との接続抵抗は、基本的には電極巻体の端面に突出している電極集電体と集電板の接合面積で決まる。電極集電体端面に平らな集電板を押し当てた状態で接触部が出来るが、電極集電体の端面が集電板に均等に当たするためには、その端面精度を非常に高く保つ必要がある。

しかし現実的にはその端面を集電板に均等に接続できる平坦度を確保する事は難しく、そのままでは接合溶接を行う部分に十分な接触を得ることができない。

電極集電体と集電板の接触を確実に行うために、Fig. 5に示すように集電板にU字状の溝を形成し、そのU字凹部を電極集電体端面に食込ませるように押し付ける構造(Fig. 6)とした。集電板に形成したU字状凹部を電極集電体端面に食込ませるためには、電極集電体端面の平坦度と集電板側の凹高さの関係が重要となる。

電極集電体の端面精度は、その構成物である電極とセパレータの巻きずれ量に関係する。電極巻きずれが大きくな

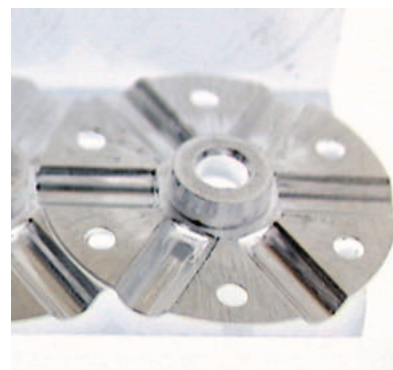


Fig. 5 Collector plate



Fig. 6 Detail of welded area on electrical contact points

ると、正負極間を分離するセパレータを越え電極同士の短絡が発生するが、短絡を避けるためにセパレータの覆い代を多くしても電極集電体端面平坦度は低く、集電溶接品質の低下は避けられない。円筒状に巻かれた電極集電体の端面平坦度を1mm以下とし集電板U字高さを1.5mmと設定し、集電板U字高さ相当分を集電体に押し付ける事で、電極集電体は1mm程度の幅を持ち集電板と接触させる事が出来る。

このU字形状凹底部を溶接点とする事で、溶接部位を点から面へ拡大する事が出来、確実かつ低抵抗な溶接接合が可能となった。また、集電板U字底部形状は曲面ではなく平面を形成する事で、溶接の軌跡が多少U字形状軸線よりずれたとしても、YAG焦点位置のずれを抑制出来、溶接品質を安定化することができた。

効率的な集電とは、電極集電体に対し均等な間隔で必要十分な集電点を設けることである(集電ピッチの設定)。円筒状に巻かれた電極に対し均等な集電ピッチで集電点を設ける事は困難であるが、前記U字形状を集電板に対し放射状に設けることで、最外周側で必要な溶接点が確保できれば内周側は十分な集電点が形成できる事となる。集電ピッチは周長に対する分割数で決まることから内周側では更に短い集電ピッチとなり、十分な接合点が確保できる。集電接続抵抗と溶接点の関係を Fig. 7 に示した。溶接本数が3本以上であればセル抵抗が一定の値となる。しかしながら、接合品質のばらつき等を勘案し安全率を高く取る意味から6分割仕様を採用した。

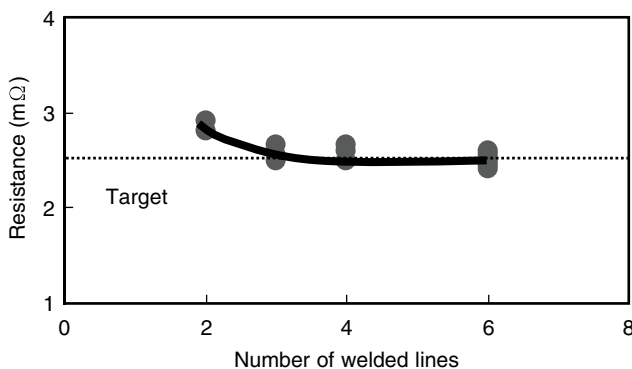


Fig. 7 Relationship between number of welded lines and resistance

5.2.2. 集電溶接

キャパシタにおいてはその動作電圧から集電はく、端子等の電解液に接触する部分にはアルミニウムを使用する。アルミニウム集電はくとアルミニウム集電板を接合する手法としてはロウ付けと溶接(MIG, TIG, スポット, YAG, 電子ビーム等)を検討した。

40μmの集電箔とアルミニウムを薄板状に成形した集電板を配置した接合では、エネルギー管理の困難な MIG,

TIG, スポット溶接やロウ付けの適用は困難である。電子ビーム溶接は、高エネルギービーム加工であるが、真空中で溶接するため与えたエネルギーが放熱されにくく適さない。本構造では集電板表面で熱エネルギーが発生する事で、集電はくとの溶融接合を行う YAG 溶接を採用した。

5.3. 端子接続構造

本構造では、新開発のケースカバー、ケース底に貫通孔を設け、貫通孔に対し集電板に設けた端子部を勘合し、溶接するので正負電極と最短距離で接合する事ができた。これより、電氣的接続用空間として集電板より外部へ引き出す構造体に必要となる距離を実質的にゼロとする事ができた。更に、直接引き出しでありかつ導通面積が確保できるので接続抵抗面においても有利な構成である。

5.4. 集電体幅の設定

電極集電体幅を短縮すると集電に必要な距離を短縮でき、ケース内空間に対する充てん率を向上する事が出来る。しかしながら単純に集電体幅の短縮は出来ず、集電体幅短縮に合わせてセパレータ幅を縮小し、電極に対するセパレータ被覆量を減少させる必要が生じ、5.2.1.集電板形状の項で述べたように電極巻体製作時には正負極、セパレータ各々に巻きずれがあり、その巻きずれがセパレータの被覆量を上回れば正負極間の短絡が発生する。電極巻体製造の端面精度から、電極集電体幅を最小にし、電極幅のケース内長に対する割合である電極てん率は85.5%と高い値を実現している。

6. セル性能

これまで述べてきた構成、構造により、Fig. 8 に示すように、キャパシタセルとして高出力と高エネルギー密度とを兼ね備えた性能を達成することができた(数値は社内測定値であり、セル耐電圧差を含む)。

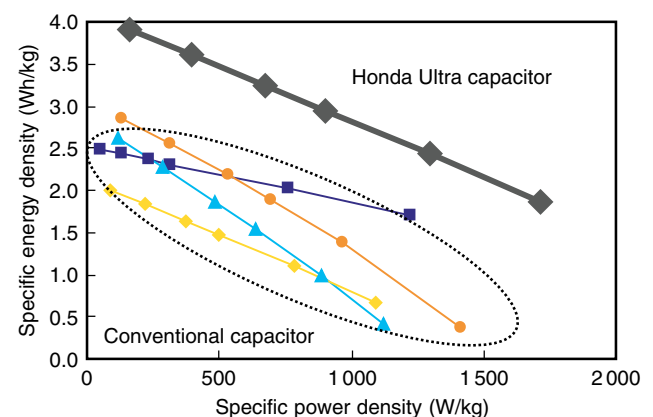


Fig. 8 Ragone plots for conventional capacitors and Honda Ultra capacitor

7. 信頼性

7.1. セル内圧と信頼性

次にキャパシタセルの内部圧力に対する考え方について述べる。本キャパシタの構成部品としては、正負極電極体、セパレータに加え、電解液が必要となる。キャパシタセルは性能および耐久性を確保するために密閉した空間が必要である。セルの温度が変化すると、ケース内に封入された各種部材(電極、セパレータ、電解液と製造時に封入されるガス、更に使用状態で発生するガス)が膨張、収縮し、セル内部の圧力が変化する。特に圧力に対する信頼性として、ケースとカバーとの溶接部、カバーと正極端子との溶接部、及び負極とケース端部との溶接部が重要である。部品単体として、ケースは4 MPa以上、ケースカバーは5 MPa以上の耐圧信頼性を確保出来た。溶接部位に関しては機械的強度には余裕があり、密封性については工程にて品質を保証している。

セル底部には火中に投下されるなど、想定外に圧力が上昇した場合にも安全性を確保するために、圧力開放弁が設置されている。セルが耐えられる圧力は、構造体となるセルケース、ケースカバー部材、及び接合部の強度により決まるが、圧力開放弁の開放時の挙動を考え、以下のように設定した。最大内部圧力は、寿命末期までに発生するガス量と初期に設定する空間で決まる。従って、内圧を設定範囲内に収めるためには、発生ガス量の管理が重要な鍵となる。そこで、寿命末期の発生ガス低減については、電極、電解液等の構成部材の不純物管理、製造工程における環境条件(温度や湿度等)を管理し、対応している。

7.2. セル耐久性

Fig. 9に示すように、実際に車両が使用される環境を想定した寿命試験においても本開発キャパシタは、特性劣化が小さく自動車用としても十分な耐久性を有する。これは冒頭で述べたキャパシタの原理に基づく特徴の一つである。

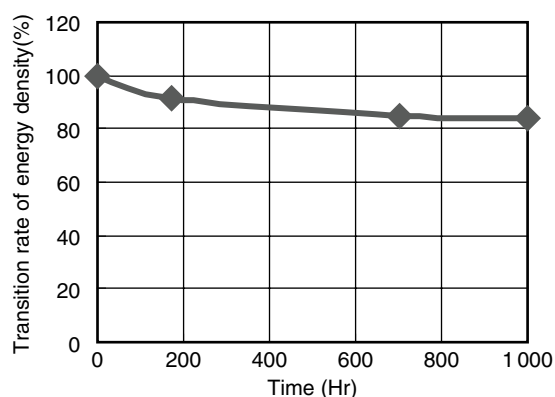


Fig. 9 Life test of Honda Ultra capacitor cell

7.3. 耐振動性

自動車用蓄電デバイスに求められる機械的特性として耐振動性がある。車両に搭載された蓄電デバイスには、車両運用時に発生する振動、衝撃が増幅、減衰され、自身の重量に比例した荷重が加わる。耐振動特性としては、この荷重が加わった時に蓄電デバイスを安定的に保持し、機械構造的な不具合すなわち導通不良、短絡等が発生しない強度が求められる。本キャパシタは、集電構造として電極集電体に対して集電板を挟み込み溶接する手法を採用した。蓄電素子体は電極集電体の溶接部・集電板を介してケース内部・ケースカバー部品に固定されており、この接合部には電解液・電極素子体合計重量にセル保持部に発生する加速度を掛け合えた荷重が加わることが考えられる。

接続構造の機械的強度確認のため、キャパシタセルの振動試験を行った。振動試験における加速度の設定は、搭載車種、搭載位置によるが、本試験ではFCX搭載位置で実測した加速度の2倍以上で行った。振動試験前後で抵抗、容量値に変化は無く、セル構造の自動車への適合性が証明された。

8. まとめ

Honda FCX用キャパシタセルの開発において低抵抗、高エネルギー化へのねらいに対して、集電構造と端子接続方法の最適化により、セル内集電接続抵抗値0.05mΩ以下、電極充てん率 86%を達成できた。

キャパシタセル単体として世界トップレベルの出力密度：1500W/kg 以上・エネルギー密度：3.9Wh/kg の単セル性能が得られた。

9. おわりに

本開発キャパシタセルはFCXに搭載され、市場投入された。今後も、本開発の低抵抗セル内構造、電極高充てん率設計をベースとし、更なる高容量化要求に答え、自動車用蓄電デバイスとしてのアプリケーションの拡大と多くの車種への適用を目指したい。

最後に、本キャパシタセルを開発するにあたり多大なご協力を頂いた社内外の数多くの関係者の方々に深く感謝致します。

参考文献

- (1) 落合志信, 内堀憲治, 原一広, 鶴見隆史, 鈴木実: ハイブリッドカー「インサイト」用モーターアシストシステムの開発, HONDA R&D Technical Review, Vol.12, No.1, p.7-14(2000)
- (2) 大園一也, 茅野守男: CIVIC Hybrid 用高出力エネルギーストレージの開発, Honda R&D Technical Review, Vol.14, No.2, p.31-36(2002)

■ 著 者 ■



沖 尚彦



松本 謙治



佐藤 健児



池尾 充



松本 康弘



安部 直行