TED Plaza

触媒燃焼を用いた高効率熱電発電システムの開発

李　敏赫

東京大学　助教
大学院工学系研究科機械工学専攻
mlee@mesl.t.u-tokyo.ac.jp

１．はじめに

自律ロボットは，社会インフラ保全，農林水産業，災害対応，医療・福祉などの，多様な産業分野における活用が期待されている．しかし，自律ロボットの長時間駆動や高度なミッションの遂行を可能とするためには，バッテリに替わる新しい電源の開発が必要である．プロパンやブタンのような炭化水素系の液化燃料を用いる発電システムの場合，リチウムイオン二次電池と比べ燃料のエネルギ密度が数十倍高いため，発電効率が 10%程度と低くても，持続駆動時間を数倍に延長することが期待できる．さらに，低温環境で性能が低下せず，充電を必要としないため，より多様なミッションへの対応が可能となる．

日本では，ブタンが充填されたカセットボンベが広く普及しており，調理や暖房等に用いられている．カセットボンベは安全性や備蓄性に優れており，利用上の便宜性も高い．ブタンカセットボンベを燃料とする可搬型の電源としては，レシプロエンジン（飯田，2010）を用いたものが市販されており，固体酸化物形燃料電池（SOFC）（鷲見，2013）や熱電発電（Shimokuri, 2018）によるシステムも提案されている．しかし，レシプロエンジンの場合，騒音が大きく，エンジンオイルが必要であるなどメインテナンスが必要であり，また一酸化炭素や窒素酸化物が排出されるため，屋内での使用には不向きである．SOFC の場合，発電効率は非常に高いが，立ち上げ用のバーナや燃料改質器といった補機が必要となるため，体積密度が低い．また，燃料を改質せず供給する場合は，炭素析出による触媒劣化が常に課題となるため，頻繁なオン・オフを必要とするシステムには不向きである．一方，燃焼ベースの熱電発電の場合，静粛でかつ可動部フリーの高信頼性システムの構築が可能である．熱電発電に関するこれまでの研究開発は，主に高 ZT 値（性能指数）の材料開発に焦点が当てられており，熱設計や高耐熱性接合の観点からは，まだ検討が十分に進められていない．

著者が所属する東京大学機械工学専攻鈴木研究室では，東京大学精密工学専攻淺間研究室，産業技術総合研究所，株式会社ＫＥＬＫ，ダイニチ工業株式会社と共同で，カセットボンベを燃料とする高出力・高効率熱電発電システムの開発を進めてきた（鈴木ほか, 2021 ; Uchida, et al., 2022 ; Suzuki, et al., 2022）．本稿では，熱電発電システムの概要および本システムを搭載した自律ロボットによる走行試験等について紹介する．

２． 熱電発電システムの開発

図 1 に，本研究で提案する熱電発電システムの概念図を示す．燃料は，市販のブタンカセットボンベから供給され，燃焼器一体型トッパー熱電モジュールにより燃焼および一次発電が行われる．さらに，高温・中低温の排熱を，熱インピーダンスをマッチングした熱交換器一体型排熱回収熱電モジュールにより段階的に回収し，追加の発電を行う．すなわち，温度域に合わせて異な

る種類の熱電素子を用いることにより，高効率化を実現する．本稿では，特に燃焼器一体型トッパー熱電モジュールの開発について解説する．

既存の燃焼ベースの熱電発電システムでは，図 2a に示すように，燃焼器を市販の熱電発電モジュールで挟み込んだ構造となっているため，熱損失が大きく発電効率の向上に限界があった．また，一般に熱電発電モジュールはハンダ付けで組み立てられているため，高温端の上限温度は 300 ºC 未満であり，燃焼熱を有効に用いることができていなかった．本研究では，図 2b に示すように，燃料・空気混合気を熱電素子に沿って流すことにより，熱伝導による熱損失分を回収する対流効果（Yamamoto, et al., 2006）に加え，熱電素子の高温端に設けた触媒層における触媒燃焼熱を発電に利用することで，熱損失を最小限に抑えた熱電発電システムを提案している（彭ほか, 2019）．熱電素子の材料としては，耐熱性・耐酸化性に優れ，常温から 1000 ºC 付近までの幅広い温度領域で安定な熱電性能を示す SiGe を採用した．

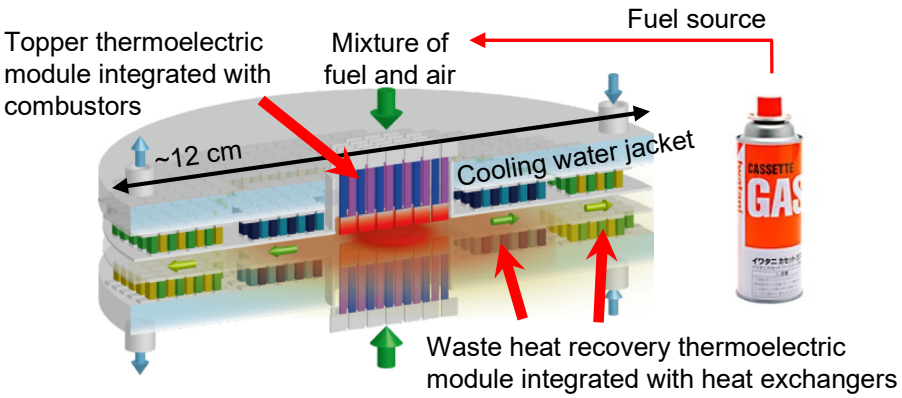

Fig. 1　Schematic of the thermoelectric generator system (鈴木ほか，2021).

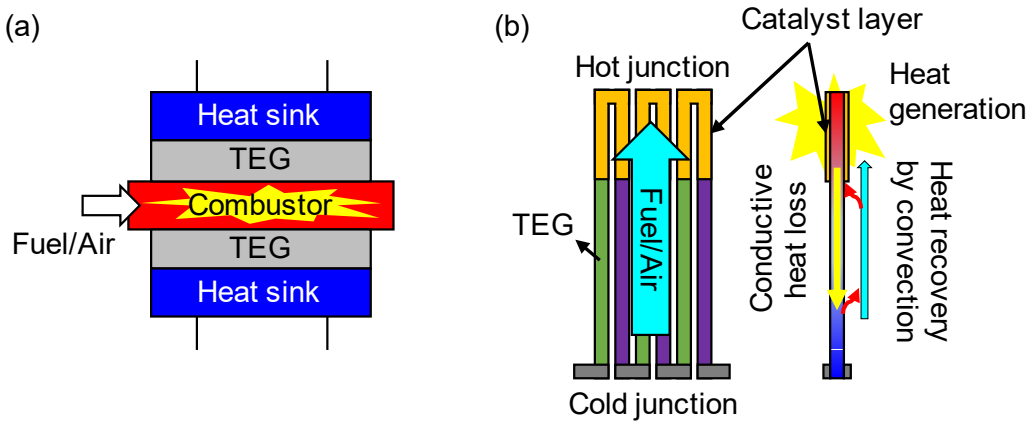

Fig. 2　Schematic of (a) the conventional thermoelectric generator system compared with (b) the present system using the convection effect and catalytic combustion.

2・1　モデル燃焼器を用いた触媒燃焼実験

熱電発電システムにおける燃焼場を模擬するため，SiGe と同程度の熱伝導率を有する石英基板を用いて，モデル燃焼器を試作した．厚さ 1 mm，25 mm 角の石英基板に，プラズマ溶射法により厚さ約 50 μm の多孔質アルミナ層を形成し（図 3a），触媒担体表面にパラジウム触媒を含浸させ，燃焼触媒層とした（図 3b）．5 枚の基板を 1 mm 間隔で配置し，中央に位置する基板の流れ方向表面温度分布を，中心に 2 mm 幅の隙間を設けた基板 1 枚（図 3c），および透明石英基板 1 枚を通して，放射温度計（測定波長 : 1.95 - 2.6 μm，計測スポット直径 : 0.6 mm）により計測した．また，アルミナがコーティングされた金属針付きシリンジにより，流路中央で燃焼ガスをサンプリングし，ガスクロマトグラフィを用いて流れ方向の燃料濃度分布を計測した．

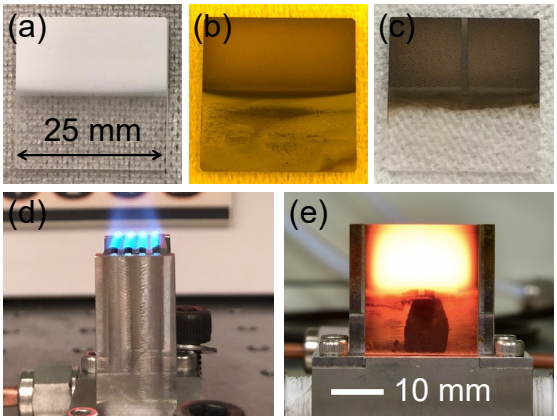

Fig. 3　Photographs of the catalyst layer and combustor (李ほか，2020).

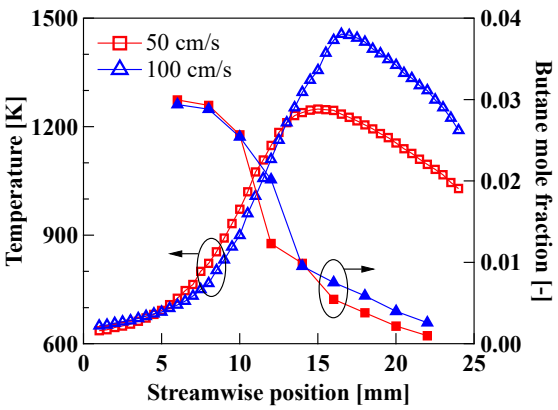

Fig. 4　Distribution of the temperature and butane mole fraction (李ほか，2020).

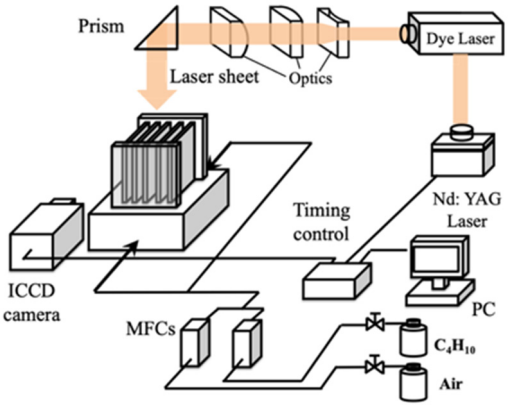

Fig. 5　Schematic of the OH-PLIF measurement system.

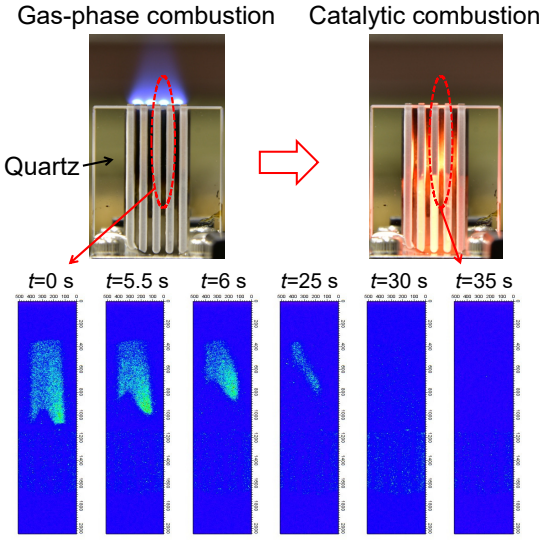

Fig. 6　Measured OH distributions according to the change in the combustion mode.

燃焼開始直後は，図 3d に示すように，燃焼器出口で火炎が生じるが，触媒層の温度上昇に伴い触媒燃焼反応が気相の燃焼反応より優位になるため，最終的には自発的な消炎が起こり，図 3e に示すように触媒反応のみにより燃焼が持続する．図 4 に，出口平均流速 50 cm/s，100 cm/s，当量比 1 の混合気条件における，表面温度およびブタン濃度分布の計測結果を示す．低温端側における下に凸な温度分布は，対流効果によって低温端側への熱伝導損失が抑制されていることを示している．50 cm/s と 100 cm/s の流速条件に対して，それぞれ 613 K と 803 K の温度差が得られ，その時の低温端における温度勾配は対流効果がない場合に比べて大幅に減少し，6 K/mm と 4 K/mm となる．従って，熱電素子としての等価的性能指数（彭ら，2019）は，それぞれ 7.3 と 13 倍に増加したことになる．また，ブタン濃度分布の結果から，触媒反応により 90%以上の燃焼効率が達成できていることが確認できた．

一方，燃焼器内部において気相反応が発生する場合，熱電素子への伝熱の低下や逆火の可能性が懸念される．そこで，平面レーザ誘起蛍光法（Planar Laser-Induced Fluorescence: PLIF）により流路内の OH ラジカル分布を計測することで，気相反応の有無を確認した．図 5 に，実験系の模式図を示す．Nd:YAG レーザ励起の色素レーザにより波長 283 nm の励起光を生成し，レーザビームを 3 枚の円筒型光学レンズによりシート状に整形して，燃焼器の上部から照射した．OH の蛍光強度は，中心波長 307 nm のフィルタを通して ICCD カメラにより計測し，レーザ強度の分布はアセトン PLIF により補正した．その結果，図 6 に示すように，初期の有炎燃焼時は燃焼器出口側の火炎中に OH ラジカル分布が計測されるものの，十分時間が経ち完全に触媒燃焼へ移行した後は，流路内において OH ラジカルは計測されず，全ての反応が触媒層における表面反応のみにより支

配されることが分かる．

2・2　SiGe 素子を用いた燃焼器一体型トッパー熱電モジュールの試作

図 7a に，SiGe 素子の製作プロセスを示す（Fujimoto et al., 2022）．ボロン（B）とリン（P）をそれぞれドープした，p 型と n 型の $Si_{80}Ge_{20}$ 多結晶粉末を一体焼結することにより，直径 20 mm，厚さ 10 mm の高密度ペレットを形成した．次に，放電加工により脚部を分け，1 mm 厚の板状にスライスすることで，図 7b に示す長さ 12 mm の SiGe 素子を試作した．前述した触媒層形成方法により，SiGe 素子の上部 4 mm の両面に Pd・多孔質アルミナ触媒層を形成した（図 7cd）．

次に，燃焼器一体型トッパー熱電モジュールの燃焼・発電試験を行った．96 対の SiGe 素子を 0.5 mm の間隔に保ち，素子の底面（低温端）を電極部に半田付けすることで，直列に接続した．K タイプの素線型熱電対を中央の素子の底面に固定して低温端の温度を測定し，最上部の温度分布はサーモグラフィにより計測した．燃料と空気の混合気は，素子配列の下側から流し，触媒燃焼させた．図 8 に，燃焼試験時の様子および素子上部の温度分布計測結果の例を示す．

図 9 に, 500 W の投入熱量, 0.5 の当量比条件における, 出力電圧および電力の計測結果を示す．開放端電圧 11 V，最大電力として 3.6 mW が得られた．しかし，素子長が 12 mm と比較的短いため対流効果は十分得られず，低温端への熱損失が大きい．そのため，低温端の温度が上昇し，半田接合部が不良となり，モジュール全体の抵抗が 300 kΩ 以上に上昇したため，設計値通りの発電量は得られていない．しかし，抵抗が設計値の 100 Ω 以下となった場合，現在の測定値の 3.6 mW から推定すると，トッパー熱電モジュールのみで約 14 W の発電量，2.8%の発電効率が得られると見込まれる．

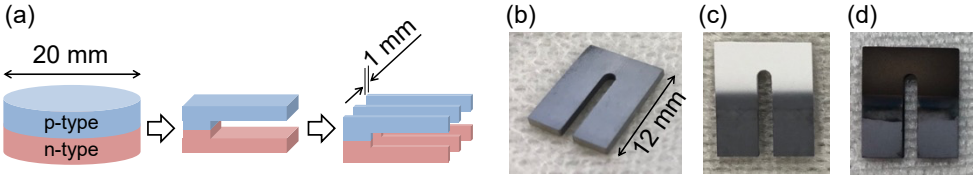

Fig. 7　(a) Schematic of the SiGe thermoelectric generator (TEG) fabrication process and photographs of the prototype TEG device(b) before and after forming (c) the catalyst support and (d) catalyst layer.

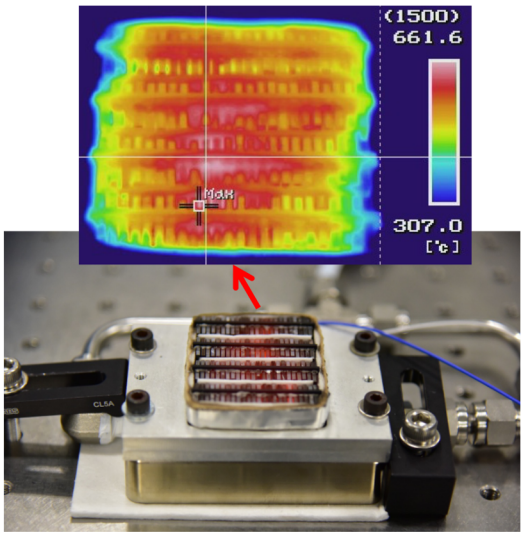

Fig. 8　Photograph of the prototype module and temperature distribution on the top of the module measured by using thermography.

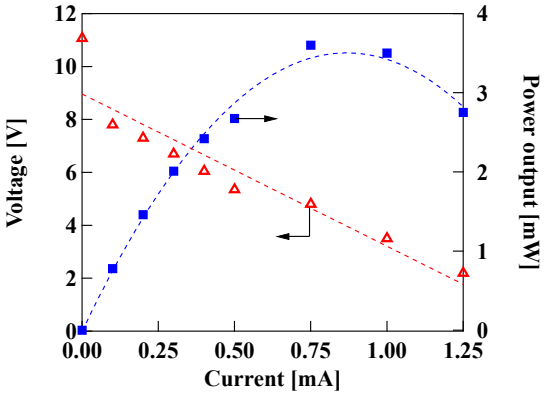

Fig. 9　Measurd *I-V* and *I-P* curve when the input power and equivalence ratio are 500 W and 0.5, respectively.

3．　熱電発電システムの運用テスト

図 1 に示したような，2 台の燃焼器一体型トッパー熱電モジュールを対向させ，燃焼ガスの排熱回収のための流路を左右に設けた熱電発電システムのプロトタイプを試作した．排熱回収流路には，4 対の Bi-Te 熱電モジュールと，その低温端を冷却するための水冷ジャケットを取付けた．

システム全体の構成については，既報（鈴木ほか，2021；Suzuki et al., 2022）を参照されたい．

図 10 左に，車輪型ロボット（JACKAL，Clearpath Robotics 社製）に本研究で開発した熱電発電システム，センサ類を搭載した自律ロボットの写真を示す．ロボットには，GNSS（Global navigation satellite system）センサおよび 3 次元 LiDAR（Light detection and ranging）が装着されており，LiDAR により障害物を検知して回避しつつ，GNSS により取得した自己位置情報を用いて目標位置に移動する．さらに，周囲の環境を計測するため，RGB カメラおよび線量計が搭載されており，目標位置に到着した後，目標位置を更新して新規の目標位置に移動することにより，自律的な環境モニタリングを行う．今回のテストでは，トッパー熱電モジュールの代わりに有炎燃焼器を実装しており，排熱回収熱電モジュールのみで発電を行うため，正味の出力は 70 W 程度であり，250 g のブタンが充填されたカセットボンベ 2 本で，約 6 時間の走行が可能である．

2021 年 7 月 15 日に，福島県双葉郡大熊町の帰還困難区域において，自走および長時間の環境モニタリングを無人で行えることを実証した（李ほか，2021）．今後，トッパー熱電モジュールの実装および熱損失の低減などにより，システムのさらなる高効率化が可能であり，100 W 以上の発電出力と 10%の発電効率が達成できると考えられる．さらに，ニューラルネットワークを用いてロボット駆動系の消費電力を推定し，電源状態を予測しながらロボットのミッションを決定するなど，走行距離の延長やミッションの多様化を目指した取り組みも進めている（筑紫ほか，2021）．

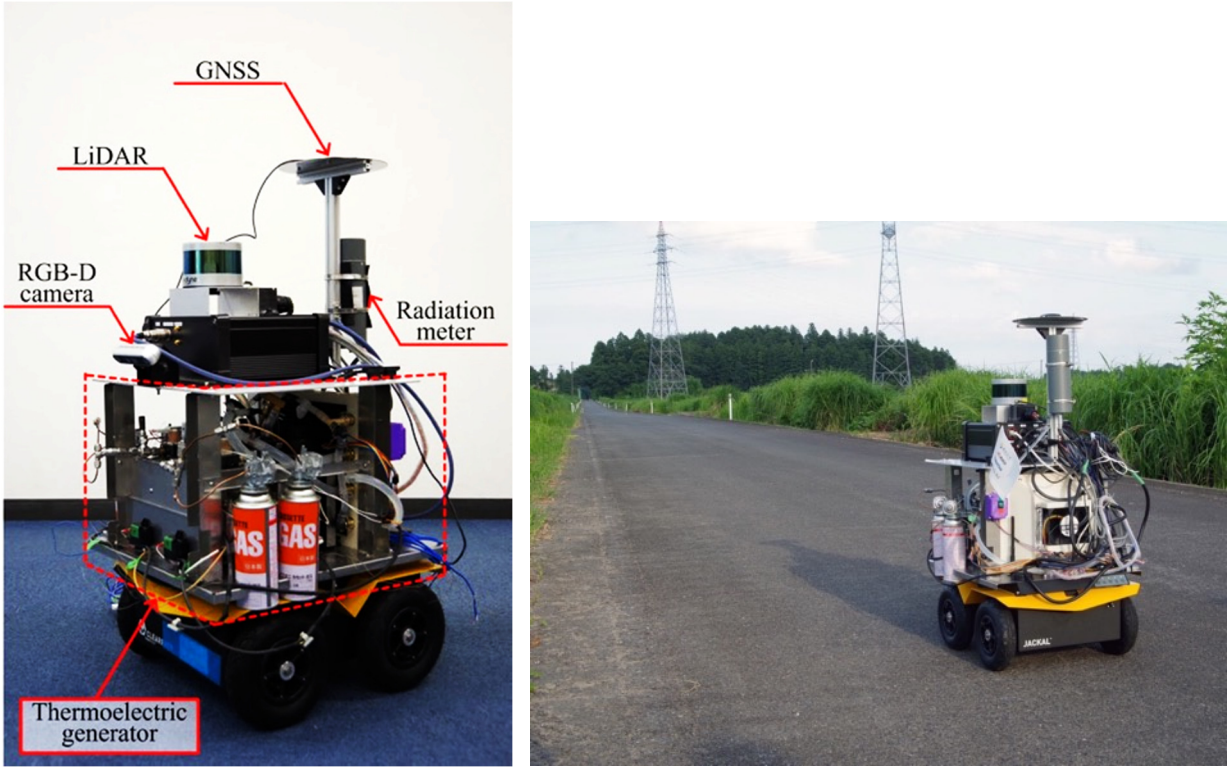

Fig. 10　Photographs of the prototype autonomous robot powered by the thermoelectric generator (left) and driving test demonstrated at the difficult-to-return-zone of Okuma, Fukushima (right) (李ほか，2021).

４．　おわりに

本稿では，市販のカセットボンベから供給されるブタン燃料を用いた，新しい高効率熱電発電システムの開発とその自律ロボットへの適用に向けた取り組みについて紹介した．トッパー熱電モジュールでは，SiGe 熱電素子の高温端に Pd・多孔質アルミナ触媒層を形成して直接加熱を行うとともに，燃料・空気の混合気を板状熱電素子の低温端から高温端に向けて流すことにより熱伝導損失を低減させた．また，排熱は Bi-Te 熱電モジュールにより回収した．現状では発電効率は低いものの，自律的に環境モニタリングを行う車輪駆動型ロボットの走行ができることを示した．

今後，10%の正味発電効率の達成を目指し，高性能触媒層の開発や SiGe 素子形状の最適化，さらなる熱損失の低減などを進める．また，ブタンの代わりにバイオエタノールなどを燃料として用いる，低環境負荷型発電システムの開発についての検討を進めていく．

謝　辞

本研究は, NEDO 先導研究プログラム・新産業創出新技術先導研究プログラムの支援を受けた. 自律ロボットの帰還困難区域での走行試験においては，福島県双葉郡大熊町のご協力を得た．記して感謝の意を表する.

文献

筑紫彰太, 濱崎峻資, 永谷圭司, 淺間一, 李敏赫, 鈴木雄二, ニューラルネットワークによる移動ロボットの駆動系の消費電力推定, 第 22 回計測自動制御学会システムインテグレーション部門講演会予稿集, (2021), 1H5-06.

Fujimoto, S., Nagase, K., Ohshima, H., Murata, M., Yamamoto, A. and Lee, C. H., Thermoelectric module of SiGe bulk alloys forming p-n junction at hot side, (2022), to be submitted.

飯田道博, 前田譲治, 笹嶋剛, 藤沼正訓, 深野純, カセットガス発電機「エネポ」の開発, Honda R&D Techincal Review, Vol.22, No.2 (2010), pp.20-27.

李敏赫, 彭俊傑, 鈴木雄二, 触媒燃焼で直接加熱される高温・高効率マイクロ熱電発電, 第 57 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, (2020), D221.

李敏赫, 筑紫彰太, 鈴木雄二, 淺間一, 帰還困難区域での熱電発電システムを用いた自律移動ロボットの実地走行～家庭用カセットボンベを燃料として長時間の環境モニタリングを実現～, 東京大学大学院工学系研究科プレスリリース, (2021).

彭俊傑, 李敏赫, 范勇, 山本淳, 鈴木雄二, 触媒燃焼で直接加熱される金属製熱電発電モジュールの試作, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2019 講演会論文集 (2019), D214.

Shimokuri, D., Autonomous power system ising small scale vortex combustor, Jounal of Physics: Conference Series, Vol.1052, No.1 (2018), p.012003.

鷲見裕史, ハンディ固体酸化物形燃料電池（SOFC）システムの実証, 日本機械学会誌, Vol.116, No.1139 (2013), p.737.

鈴木雄二, 李敏赫, 淺間一, 永谷圭司, 濱崎峻資, 筑紫彰太, 李哲虎, 范勇, 長瀬和夫, 八馬弘邦, 藤本慎一, 横尾直樹, 佐藤浩之, 小田川健一, 自律ロボットのための燃焼器・熱交換器一体型熱電発電システムの開発, 日本ロボット学会誌, Vol.39, No.2 (2021), pp.120-124.

Suzuki, Y., Lee, M., Uchida, S., Asama, H., Nagatani, K., Hamasaki, S., Chikushi, S. Lee, C. H., Fan, Y., Nagase, K., Hachiuma, H., Fujimoto, S., Yokoo, N., Sato, H. and Odagawa, K., Combustor/heat exchanger-integrated thermoelectric power generation system for autonomous robots, (Invited Talk) 2022 TMS Annual Meeting & Exhibition, Anaheim, USA, (2022), to be presented.

Uchida, S., Lee, M., Lee, C. H. and Suzuki, Y., High-temperature monolithic SiGe thermoelectric device directly-heated by catalytic combustion, Applied Physics Letters, (2022), in press.

Yamamoto, A., Noguchi, T., Obara, H. and Ueno, K., All-metal miniature power generation device and its application to gas combustion system. Proceedings of the 23rd International Conference on Thermoelectrics, (2004).