

大気中での熱電モジュール評価装置の開発と検証

池内 賢朗^{1*}, 石川 淳一¹, 島田 賢次¹, 舟橋 良次²

¹ アドバンス理工株式会社, 〒224-0053, 神奈川県横浜市都筑区池辺町 4388 港北住倉ビルディング

² 国立研究開発法人 産業技術総合研究所, 〒563-8577, 大阪府池田市緑丘 1-8-31

The Journal of the Thermoelectrics Society of Japan Vol. 15, No. 2 (2018), pp. 85-88
© 2018 The Thermoelectrics Society of Japan

Development and Verification of Evaluation Instrument of Thermoelectric Module in Air

Satoaki Ikeuchi^{1*}, Junichi Ishikawa¹, Kenji Shimada¹ and Ryoji Funahashi²

¹ ADVANCE RIKO Inc., 4388 Ikonobecho, Tsuzuki-ku, Yokohama, Kanagawa 224-0053, Japan

² National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), 1-8-31 Midorigaoka, Ikeda, Osaka, 563-8577, Japan

The module performance is evaluated by the open circuit voltage, the power generation, the heat flow from high temperature side to low temperature side, the power generation efficiency, and so on. ADVANCE RIKO developed the evaluation instrument of the thermoelectric module in vacuum or inert gas (PEM-2) and small thermoelectric module in vacuum (Mini-PEM). To get the information of the chance at long time of thermoelectric module, the time dependence of the module performance, we developed the evaluation instrument of the thermoelectric module in air (F-PEM). In this purpose, to verify the instrument performance of F-PEM, we measured the open circuit voltage, the power generation, the heat flow from high temperature side to low temperature side, and the power generation efficiency in peltier module by F-PEM and PEM-2. The open circuit voltage and the maximum power generation agreed well with F-PEM and PEM-2. The heat flow from high temperature side to low temperature side by F-PEM is about 10 % larger than that by PEM-2. The power generation efficiency by F-PEM is below 5% smaller than that by PEM-2. The measurement result by F-PEM is enough reliable.

(Received: May 22, 2018; Accepted: July 9, 2018; Published online: December 21, 2018)

Keywords: thermoelectric module; power generation; heat flow; power generating efficiency; flow calorimeter

1. はじめに

熱電発電は熱から電気へ動力なしで直接変換できるため、未利用熱を再利用するという点で期待されている。工場排熱や自動車排熱の場合、数 100 degC の温度に達している熱源を大気中で利用することが必須である。より実用条件に近い形での評価が求められる。

実際には、複数の熱電材料から構成されている熱電モジュールが用いられている。Fig. 1. に、熱電モジュールを用いた熱電発電の模式図を示す。熱電変換効率 η は以下の式で表すことができる。

$$\eta = \frac{P}{Q_h} = \frac{P}{Q_c + P} \quad (1)$$

ここで、 P [W] は負荷で生じる発電量、 Q_h [W] は高温側の熱流量、 Q_c [W] は低温側の熱流量を示している。発電量と熱流量の測定を行うことができれば、変換効率の評価を行うことができる。

舟橋ら¹⁾は、大気中で大きな温度差をつけて熱電モジュール

の発電量を評価できる装置を開発した。一方、弊社では、不活性ガス雰囲気中もしくは真空中で 20mm 角~40mm 角の熱電モジュールの発電量と変換効率を評価できる装置 (PEM-2) の製品開発²⁾と、真空中で 10mm 角以下の熱電モジュールの発電量と変換効率を評価できる装置 (Mini-PEM) の製品開発³⁾を行った。

熱電モジュールをシステムに組み込む上で、実環境下に近い条件での測定が求められる。例えば、高温側の温度を長時間保持した状態で試験を行うことや、高温側の温度を高温と低温にサイクルさせて試験を行うことである。これらの試験

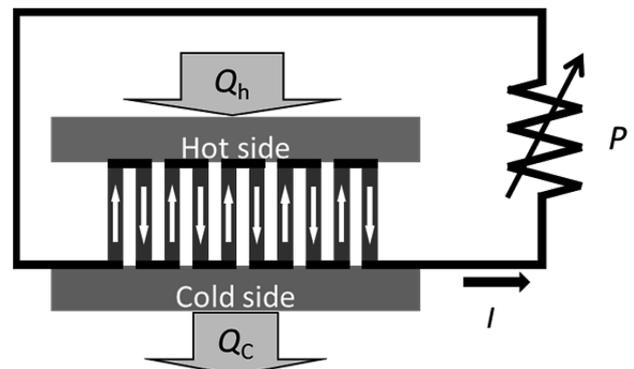


Fig. 1. Schematic image of thermoelectric generation

* Corresponding Author: satoaki_ikeuchi@advance-riko.com

で得られる発電量や熱流量から、熱電モジュールの経時変化の情報を得ることができる。長時間の試験を簡便に行うために、大気中で熱電モジュールの発電量と熱流量を測定できる装置 (F-PEM) を開発している。本研究では、新開発の装置 (F-PEM) の性能を検証するために、今までに製品化した装置 (PEM-2) と比較実験を行った。本論文では、装置および測定原理について説明するだけでなく、市販のペルチエモジュールを PEM-2 の試料系と F-PEM の試料系で測定した結果を比較する。

2. 装 置

2.1. 測定原理

変換効率を評価するためには、発電量と熱流量を同時に計測して、式 (1) で計算して求める必要がある。発電量を得るためには Fig. 1. の負荷の抵抗を変えて負荷に流れる電流を計測することで電気計測を行うことが理想である。F-PEM, PEM-2, Mini-PEM では、試料に加える負荷電流 I [A] を変えて試料の電圧 $V(I)$ [V] を測定することで発電量を計測している。発電量 $P(I)$ [W] の電流依存性は以下の式で示すことができる。

$$P(I) = V(I)I = (V(0) - RI)I \quad (2)$$

ここで、 $V(0)$ [V] は試料の開放電圧、 R [Ω] は試料の抵抗を示している。最大発電量 P_{\max} [W] は、以下の式で示される。

$$P_{\max} = \frac{V(0)^2}{4R} \quad (3)$$

一方、負荷電流 I を加えている時の低温側の熱流量 $Q_c(I)$ [W] は以下の式で表される。

$$Q_c(I) = Q_c(0) + \frac{T_c}{T_h - T_c} V(0)I + \frac{1}{2} RI^2 \quad (4)$$

ここで、 $Q_c(0)$ [W] は電流 0 [A] の時の熱流量、 T_h [K] は試料の高温側の温度、 T_c [K] は試料の低温側の温度を示している。式 (1), (2), (4) を用いると、変換効率 $\eta(I)$ は以下の式で表される。

$$\eta(I) = \frac{V(0)I - RI^2}{Q_c(0) + \frac{T_h}{T_h - T_c} V(0)I - \frac{1}{2} RI^2} \quad (5)$$

最大変換効率は T_h と T_c の間で試料の性能指数 z [K^{-1}] が変わらないと仮定すると以下のように表される。

$$\eta_{\max} = \frac{T_h - T_c}{T_h} \frac{\sqrt{1 + \frac{1}{2}(T_h + T_c)z} - 1}{\sqrt{1 + \frac{1}{2}(T_h + T_c)z} + \frac{T_c}{T_h}} \quad (6)$$

式 (6) は熱から電気に変換されるエネルギーはカルノー効率を上回ることができないことを示しており、熱力学第 2 法則に矛盾していない。

実際の測定では、 T_h と T_c が温度安定になっていることを確認した上で、負荷電流を変えて開放電圧・発電量・変換効

率の測定を行っている。最大発電量と最大変換効率については、発電量の電流依存性および変換効率の電流依存性から多項式フィッティングによって求めている。

2.2. 新装置の概要

大きな温度差をつけて熱電モジュールを測定する装置は、加熱ブロック・高温部熱流量計測ブロック・低温部熱流量計測ブロック・冷却ブロックから成り立っている。PEM-2 と F-PEM の模式図を Fig. 2 に示す。

F-PEM の加熱ブロックについては、長時間加熱を行うことを想定して以下の対策を行った。試料との接触面以外は輻射板を入れることにより側面への熱放射のロスを減らすことにした。また、大気中で測定を行うため、500 degC 程度では酸素と反応しにくい材料を加熱ブロックに使用した。高温側に熱流量計測ブロックはない。これは、高温時には輻射の影響で熱流量の評価が難しいことと、熱流量計測ブロックをつけることにより試料の高温側の温度が加熱ブロックの温度よりも過剰に低くなり加熱ブロックの温度を必要以上に高くする必要があるのである。

低温側は冷却するだけでなく温度安定させる必要がある。一定温度に制御された水を使うことで対応している。F-PEM と PEM-2 では、 ± 0.05 degC 未満に温度制御可能な循環器を用いて測定を行っている。今回の一連の実験では循環器の設定温度は 20 degC で行った。低温側の熱流量計測ブロックは、F-PEM では冷却ブロックと兼用している。この場合

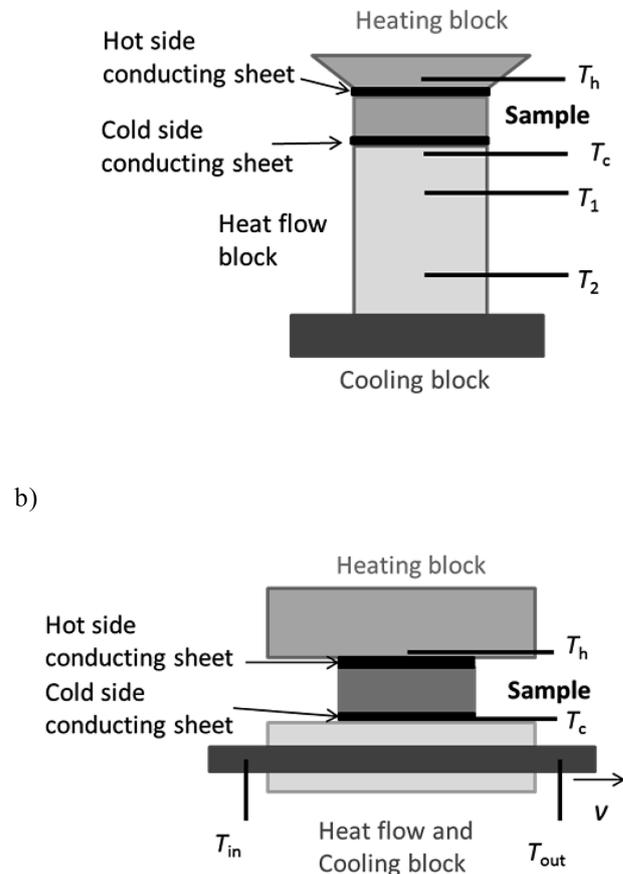


Fig. 2. Schematic image of sample system of a) PEM-2 (Production type), b) F-PEM

の利点は、試料の低温側の温度がより冷却温度に近づくためである。

PEM-2では、熱流計測用ブロックの温度を複数点計測しフーリエの法則に基づいて熱流量を計算する温度傾斜法を用いている²⁾。しかし、F-PEMでは、冷却水が冷却ブロックに入る時の温度 T_{in} [K] と出るときの温度 T_{out} [K] を計測し、水の体積比熱容量 C [J K⁻¹ m⁻³] と流速 v [m³ s⁻¹] を用いて熱流量 $Q_c(I)$ [W] を評価するフローカロリメータを用いている。熱流量の計算式を以下に示す。

$$Q_c(I) = C v (T_{out} - T_{in}) \quad (7)$$

フローカロリメータを用いた熱流量評価は 10 mm 角以下の試料サイズを測定可能な Mini-PEM でも行っている^{3,4)}。F-PEMでは、40 mm 角以上の試料サイズをターゲットとしており、Mini-PEM と比べて 10 倍以上の熱流量を評価する必要がある。したがって、冷却水の流速 v も 10 倍以上にする必要がある。F-PEMでは、30 ml s⁻¹ で実験を行った。

2.3. 測定条件

試料の高温側温度は加熱ブロックの試料近傍で測定した熱電対温度を用い、試料の低温側温度は低温側の熱接合シートの中央部にカプトンテープで止めた熱電対温度を使用した。この低温側の温度の測定位置は製品化されている PEM-2 とは異なるが、F-PEM との比較実験を同一条件で行うためにこのようにした。

試料の高温側と加熱ブロックの間の接合シートと試料の低温側と低温側熱流計測ブロックとの間の接合シートは、0.5mm 厚の Manion50 α (積水ポリマテック製) を使用した。

パルチエモジュールは、72008-199-100 (フェローテック製) を使用した。モジュールのセラミック基板のサイズが 40mm 角であるので、PEM-2 では 40mm 角用の熱流量計測ブロックを用いて測定を行った。試料高温側の設定温度は最大 125 degC で実験を行った。F-PEM では、大気中・荷重 500N で

実験を行い、PEM-2 では、真空中および窒素ガス雰囲気下・荷重 500N で実験を行った。

3. 測定結果と考察

試料低温側温度 T_c の試料高温側温度 T_h 依存性を Fig. 3 に示す。F-PEM の試料低温側温度は PEM-2 と比べて明らかに低い。これは、F-PEM では冷却ブロックと熱流量計測ブロックが一体になっているため、低温側の温度が低いことに対応している。

試料の開放電圧 $V(0)$ の試料の温度差 ($T_h - T_c$) 依存性を Fig. 4a に示し、試料の最大発電量 P_{max} の試料の温度差 ($T_h - T_c$) 依存性を Fig. 4b に示す。開放電圧も最大発電量も F-PEM の方が PEM-2 よりも大きい。これらは、F-PEM では低温側では温度が低いため、結果的に試料内の温度差が大きくなっていることと相関が取れている。Fig. 4a および Fig. 4b のように、試料内の温度差依存性を考慮すると、開放電圧は同一直線上にあるように見え、最大発電量も同一曲線状

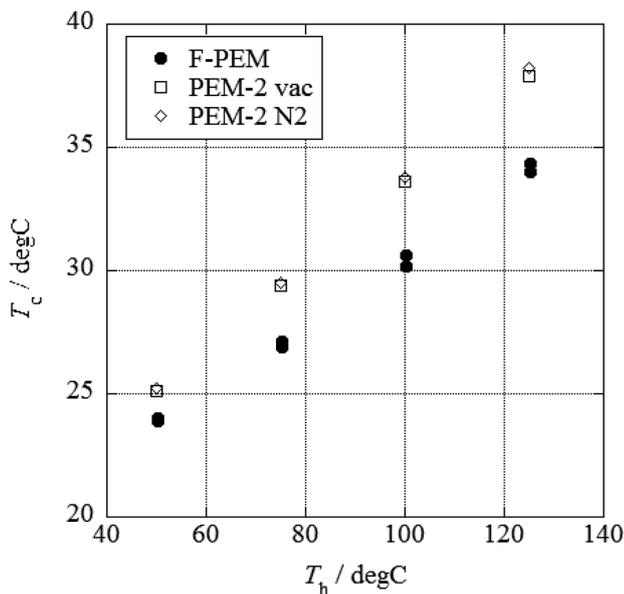


Fig. 3. The dependence of the cold side temperature T_c on the hot side temperature T_h in thermoelectric module.

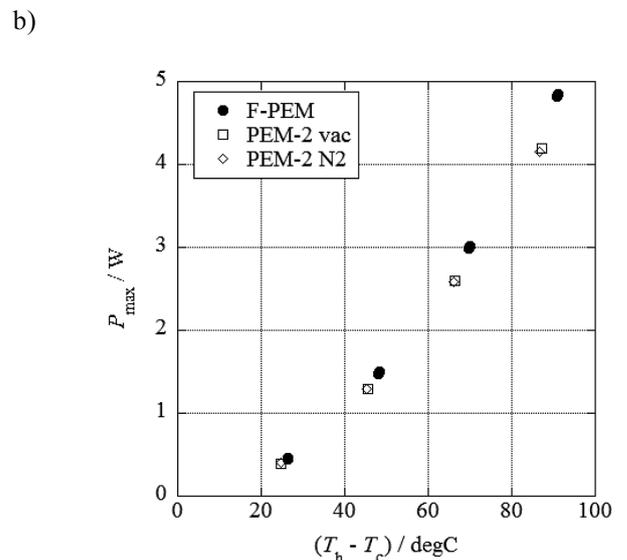
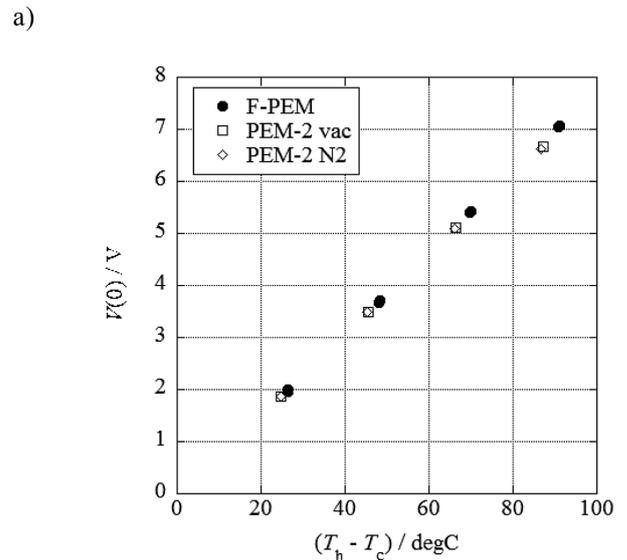


Fig. 4. The dependence of a) open circuit voltage $V(0)$ and b) maximum power generation P_{max} in thermoelectric module on the temperature difference ($T_h - T_c$)

にあるように見える。

また、PEM-2 において真空中の結果と減圧の窒素ガス雰囲気下で開放電圧と最大発電量は一致している。これは、加熱ブロックと試料の高温部の接触及び熱流計測ブロックと試料の低温部の接触が雰囲気に関わらずに一定であることを示している。F-PEM の大気中の結果も同様の結果を示しているため、0.5mm 厚の Manion50 α を接合シートとして用いる場合、40mm 角のセラミック基板が使われているモジュールに約 500N の荷重をかけて実験を行えば、電気的特性について再現している。

試料の電流 0 A の時の熱流量 $Q_c(0)$ の試料の温度差 ($T_h - T_c$) 依存性を Fig. 5a に示し、試料の最大変換効率 η_{max} の試料の温度差 ($T_h - T_c$) 依存性を Fig. 5b に示す。F-PEM の熱流量は PEM-2 の熱流量に比べて大きく、F-PEM の最大変換

効率は、PEM-2 の最大変換効率に比べて小さい。試料の温度差を F-PEM と PEM-2 で同じであると仮定すると、F-PEM の熱流量は 10% 程度大きく、最大変換効率は 5% 程度小さい。熱流量に比べて最大変換効率の差が小さくなっているのは、温度差が大きくなるにつれて熱流量は直線的に大きくなっているが、最大発電量は急激に大きくなっていることに対応している。

PEM-2 では、Fig. 2a のように加熱ブロックの試料との接触面の大きさや熱流計測ブロックの試料との接触面の大きさと試料の接触面が同じになるようにして測定を行うことを理想としている。したがって、加熱ブロックから輻射によって熱が伝わりにくい状況である。また、PEM-2 の雰囲気依存に関する熱流量の違いはほとんど見られないことから、加熱ブロックから気体伝熱によって試料に伝わる熱量も少ない。

一方、F-PEM では、Fig. 2b のように加熱ブロックの試料との接触面の大きさや熱流計測ブロックの試料との接触面の大きさは試料の接触面よりも大きい。したがって輻射熱が熱流計測ブロックに入ることが予想される。F-PEM の熱流量は過剰評価されている可能性がある。

Wang らによって行われたペルチエモジュールのラウンドロビンテストでは、測定手法の異なる装置間で熱流量が 50% 以上異なっていることが ICT2017 で報告された⁵⁾。今回の F-PEM と PEM-2 における熱流量の違いは十分に比較評価可能な範囲に入っていると考えられる。今後、この違いについてシミュレーションなどを通して検討していく必要がある。

4. おわりに

大気中での熱電モジュール評価装置 (F-PEM) を開発し、市販のペルチエモジュールを用いて、既存の装置 (PEM-2) で測定した結果と比較して装置の妥当性を検証した。開放電圧と最大発電量については、装置間で差異はほとんど見られなかったが、熱流量に関しては 10% 程度の差が見られ、最大変換効率は 5% 程度の差が見られた。この結果は、過去に報告されているラウンドロビンテストの結果⁵⁾よりも小さい。

今後、高温側の温度を高くした場合の性能確認を進めていくとともに、再現性の高い結果が出るための測定条件を詰めていく必要がある。それに伴い、長時間のサイクル試験や保持試験に耐える装置構成・標準試料についても検討することが必須である。

参考文献

- 1) Funahashi R. et al.: *J. Mater. Res.* **30**, 2544 (2015).
- 2) 石川淳一ら: 第 4 回日本熱電学会学術講演会予稿集, P-15 (2007).
- 3) 池内賢朗ら: 第 8 回日本熱電学会学術講演会予稿集, PS-1 (2014).
- 4) Hu X. et al.: *J. Electron. Mater.* **44**, 1785 (2015).
- 5) Wang, H. et al.: ICT 2017 abstracts 399 (2017).

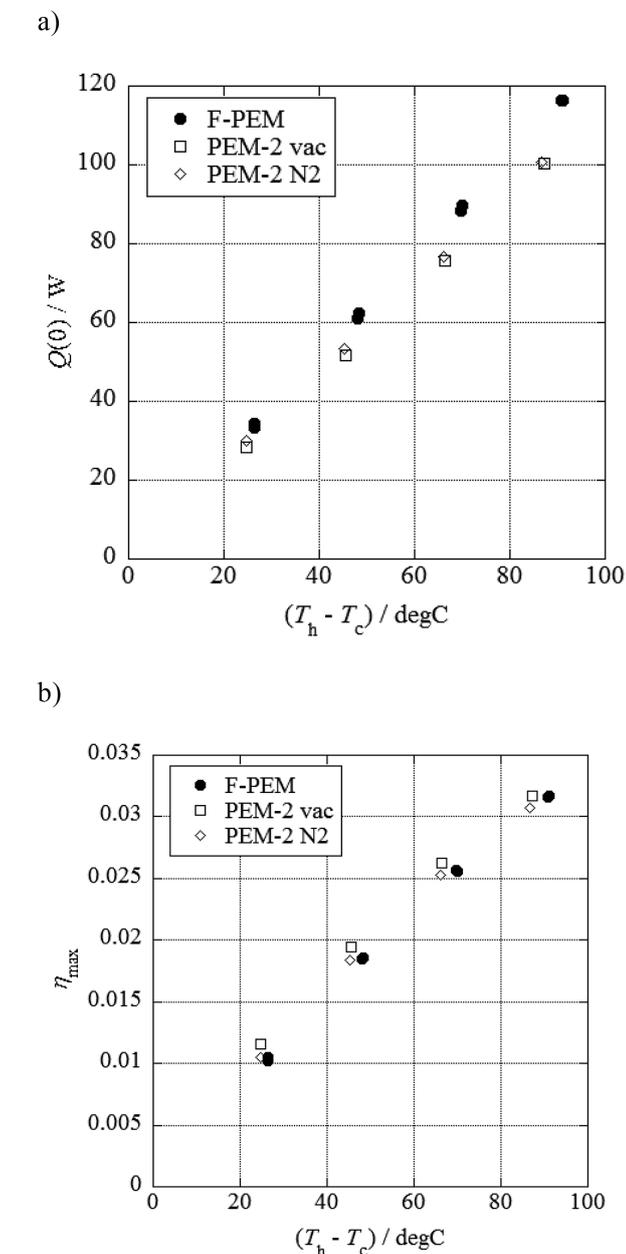


Fig. 5. The dependence of a) heat flow of cold side $Q_c(0)$ and b) maximum power generation efficiency η_{max} in thermoelectric module on the temperature difference ($T_h - T_c$)