

平成 30 年 5 月 18 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03886

研究課題名(和文) 異種金属薄板および細線系の伝熱問題の深化と極低温度差発電への応用

研究課題名(英文) Deep Understanding of the Heat Conduction Problems for Bi-Metal Plate and Wire Systems and Its Application for Thermoelectric Power Generation from a Small Temperature Difference

研究代表者

燈明 泰成 (Hironori, Tohmyoh)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：50374955

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：生活環境で生み出される極低温度差からの発電を実現するため、異種金属薄板、および細線系の伝熱問題を取り扱い、当該構造体内部の温度分布を能動的に制御可能にした。作製した極微小熱電素子やマイクロスケール電位差法を活用して金属細線の熱電特性を測定すると共に、この知見を活用して薄板型熱発電機を設計し、その性能を予測した。実際に試作した薄板型熱発電機の性能を評価したところ、低温度差から十分な発電が可能であり、40Kなる低温度差においておよそ0.3uWの出力を得た。さらに異種金属界面の酸化や積層により高出力化が可能であることを示し、実現した熱発電機により各種センサを安定的に駆動できる見通しを得た。

研究成果の概要(英文)：To realize the effective thermoelectric power generation from a small temperature difference encountered in our daily lives, the heat conduction problems for bi-metal plate and wire systems are treated, and the temperature distributions in the systems were able to be controllable. The thermoelectric properties of thin metallic wires were evaluated with use of the fabricated fine-scale thermocouple and the micro-scale potential drop technique, and based on the knowledge, a plate-type thermoelectric power generator was designed. The fabricated thermoelectric power generator realized the sufficient power generation from a small temperature difference, and the maximum power was 0.3uW at the small temperature difference of 40K. It is noted that oxidizing the bi-metal interface and stacking the plate-type thermoelectric power generator were effective to enhance the power generation performance, and the thermoelectric power generator has been expected to drive the various sensors stably.

研究分野：機械材料・材料力学

キーワード：異種金属 伝熱問題 ジュール熱 極低温度差発電 薄板型熱発電機

1. 研究開始当初の背景

金属薄膜や細線はその寸法と熱容量の小ささに起因して材料の内部が等温度になりやすい。研究代表者は最近このことを金属細線系について報告すると共に、これを細線の省エネルギー熱処理等に利用している。他方、材料内部に温度勾配を上手く生じさせることも産業上大いに利用価値がある。例えば近年、工場や発電所等での排熱を利用した発電が期待されているが、微細材料システム内部に有効な温度勾配を生じさせることができれば、より身近な、従来利用されてこなかった極低温度差からの発電も可能になると考えられる。

ところで上述の熱発電は異種金属接点で生じるゼーベック効果(熱電効果の一つで、熱から電気への変換現象)を利用するものであるが、そのための熱電材料の多くはレアメタルである。最近、研究代表者らは金属材料の原子拡散現象を利用する独自の手法により、熱電材料としての利用が期待できる非レアメタル、酸化鉄ナノワイヤ(NW)の作製に世界に先駆けて成功した。また、研究代表者らはNW等の金属細線同士の接触部に直流電流を付与して生じるジュール熱を利用した溶接手法を提案しており、近年、当該手法により熱電効果を生み出すマイクロスケール異種金属接点を作製してペルチェ効果(もう一つの熱電効果であり、電気から熱への変換現象)とゼーベック効果の同時観察に成功している。

本研究は以上の学術的背景と、研究代表者らのこれまでの研究成果に立脚して推進する。実現を目指す薄板型熱発電機(TPG)は研究代表者らが世界に先駆けて提案するものであり、2枚の異種金属薄板を積層させた構造において、異種金属界面に多数のNWを内包させてその特性を変化することにより、生活環境にある極低温度差から実用上十分な発電が実現できると着想した。

2. 研究の目的

本研究は生活環境で生み出される極低温度差からの発電を実現するために異種金属薄板および細線系の伝熱問題を取り扱い、得られた知見を活用して高効率な薄板型TPGを実現することを目的とする。具体的に、薄板に垂直な金属NWを大量に作製して当該NWの熱電能を実測すると共に、異種金属薄板および細線系の伝熱問題を解析して得られる知見と作製した金属NWを活用して独自の発想に基づく薄板型TPGを作製する。さらにこれを高効率化して体温と外環境との間に生じるわずかな温度差を利用して発電し、生体センサを安定的に駆動することを目指す。

3. 研究の方法

本研究は9項目に大別される。(1)異種金属薄板および細線系の伝熱問題の解析、では異種金属薄板系、および異種金属細線系の解析モデルを構築し、当該構造体内部の温度分布を能動的に制御可能にする。(2)極微小熱電素

子の作製、では微小領域の温度測定が可能な極微小熱電素子を作製し、(3)薄板に垂直な金属ナノワイヤの作製、では取り扱う薄板型TPGの性能向上の鍵となる金属NWを、原子拡散現象を利用して基板と垂直に作製する。

(4)マイクロスケール電位差法とWiedemann-Franz則、では熱電変換能力に関係する金属細線の電気伝導率と熱伝導率を実測し、(5)性能係数の測定、では更に金属細線のゼーベック係数を測定して性能係数を算出する。(6)薄板型熱発電機的设计と性能予測、では実際に薄板型TPGを設計すると共に、その性能を予測する。(7)薄板型熱発電機の試作と極低温度差発電、では実際に設計した薄板型TPGを製作してその性能を評価する。(8)薄板型熱発電機の高効率化、では薄板型TPG内部のサーマルマネジメントと第2金属層の変更により更なる性能の向上を図り、(9)体温を利用した生体センサの駆動、では最後にこれまでの研究成果を集約して、日常の生活環境で生じる極低温度差からの発電を実現する。

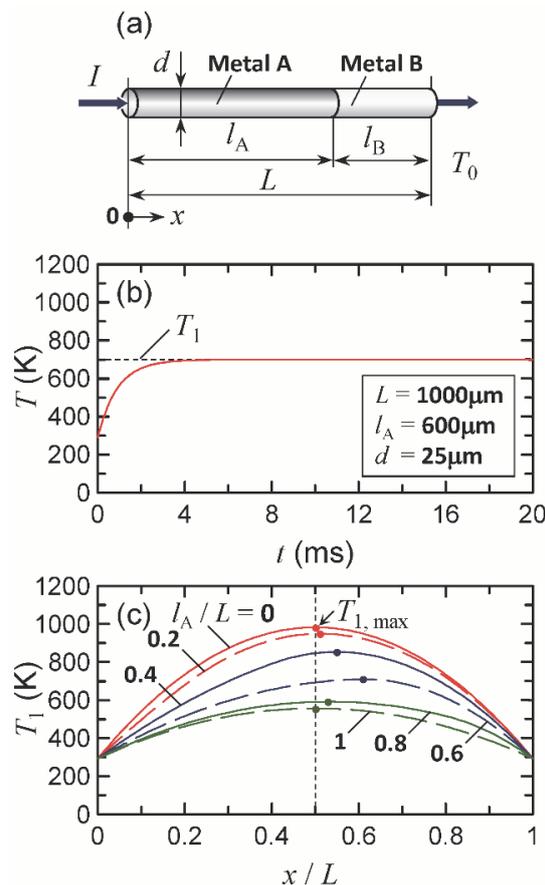


図1 異種金属細線系内部に形成される非対称温度分布 (Reprinted with permission from J. Appl. Phys., 117, 234901, 2015, Copyright (2015), American Institute of Physics)

4. 研究成果

(1) 異種金属薄板および細線系の伝熱問題の解析

異種金属細線の先端同士を接触させ、接触部から様々な間隔に配置した端子により電流を入出力した際に当該細線系内部に形成され

る非対称温度分布を解析した(図1)。温度分布の非対称性は接触部から端子を等間隔で配置した際に最も強く現れることを明らかにすると共に、この知見に基づき、当該異種金属接点を高精度にジュール熱溶接するための条件を見出した。またFe薄板の一方を熱源に接触させた際の薄板表面の温度分布を赤外線カメラで測定し、作製する薄板型TPG内部に温度勾配を形成すると共に、これを増大させるための知見を得た。

(2) 極微小熱電素子の作製

微小領域の温度測定に利用可能な熱電マイクロワイヤを作製した(図2)。直径100 μm のFeマイクロワイヤの一部を除いた表面に絶縁膜を形成し、その上からAl層を物理蒸着することで、先端に異種金属Fe/Al界面を形成した。作製した熱電マイクロワイヤは先端と他端との温度差に起因してAl層表面とFeマイクロワイヤ表面との間に熱起電力を生じるものであり、先端を指で触れた際に、体温の微妙な違いに起因して発生する熱起電力が変化することを確認した。また当該熱電マイクロワイヤのゼーベック係数を求めることで発生した熱起電力から温度を算出可能にした。

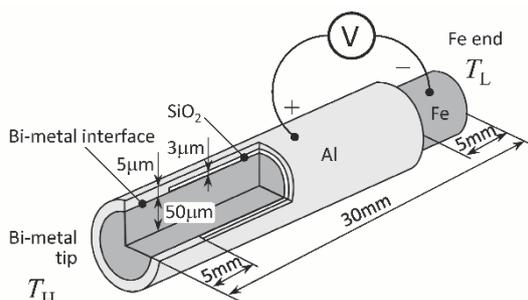


図2 熱電マイクロワイヤの構造 (Reprinted with permission from (2). Copyright (2016), Elsevier)

(3) 薄板に垂直な金属ナノワイヤの作製

Fe薄板に曲率を与えて高温放置することで原子拡散を生じさせ、これにより薄板に対して垂直なFeNWを大量に作製した。表面にFeNWを有するFe薄板に絶縁層とAl層を形成して熱電回路を形成し、これに温度勾配を与えて熱起電力を測定したところ、Feナノワイヤの含有により当該熱電回路に発生する熱起電力が大幅に増大することを確認した。詳細な分析の結果、特にFe薄板表面を酸化させたことが熱起電力の増大に効果的であることを明らかにし、異種金属界面の制御により更なる熱起電力の増大が見込まれることを示した。

(4) マイクロスケール電位差法とWiedemann-Franz則

直径100 μm のPt、Fe、Al細線を対象とし、顕微鏡観察下で実施するマイクロスケール電位差法において、細線長に比べて極めて短い電位差測定端子間隔で表面電位差を測定すると共に、端子間の温度を試算することにより、

当該細線の電気伝導率の温度依存性を実測することに成功した(図3)。さらに直径0.8 μm と極めて細いPt細線の電気伝導率を実測したところ、直径100 μm のそれと温度に対する挙動が一致し、測定した値の妥当性を確認した。また電位差測定端子間隔を長くして測定した表面電位差と、先に実測した電気伝導率の温度依存性より、細線内部の温度分布を予測する手法を考案した。

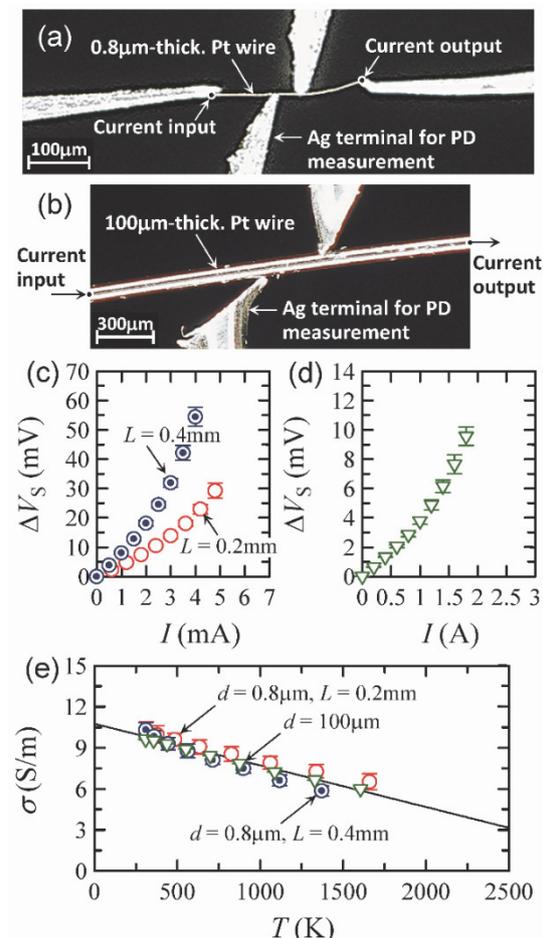


図3 マイクロスケール電位差法による金属細線の電気伝導率測定

(5) 性能係数の測定

対象とする金属細線と、異なる異種金属細線とをジュール熱により接合して熱電回路を構築すると共に、異種金属接点を細線ヒーターにより局所的に加熱して回路内に発生した熱起電力を測定することにより、直径100 μm のFe/Al異種金属接点におけるゼーベック係数を測定することに成功した。

(6) 薄板型熱発電機の設計と性能予測

Fe薄板に第2金属層を積層した薄板型TPGを設計すると共に、これまでに実測した諸物性値も用いてその性能を予測した(図4)。さらに当該薄板型TPGの特徴を生かした熱発電効率の飛躍的な向上を目指し、薄板型TPGを積層した、新しい積層型TPGを提案すると共に、当該TPGの出力を算出する理論モデルを構築した。異種金属界面、および積層接点に

接触抵抗が含まれることを考慮して理論モデルを構築することにより最大出力を算出したところ、積層型 TPG では出力が最大となる最適な積層枚数が存在する可能性が示唆された。

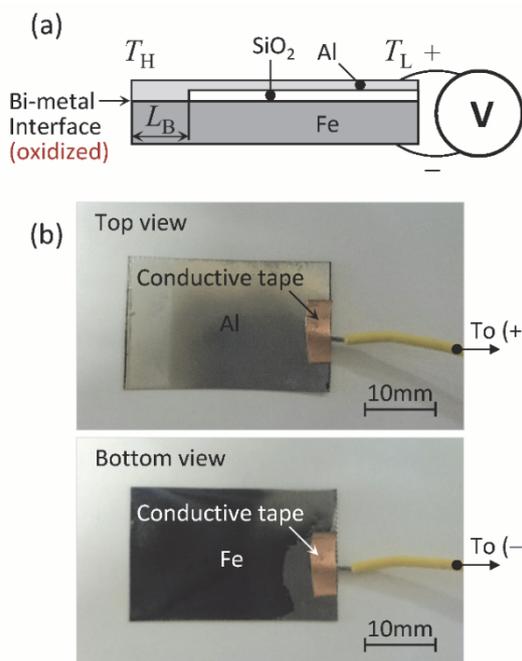


図 4 薄板型熱発電機の構造と外観 (Reprinted with permission from (1). Copyright (2016), Elsevier)

(7) 薄板型熱発電機の試作と極低温差発電

厚さ 0.1mm の Fe 薄板の一部を局部的に酸化させ、後に異種金属界面とするところをマスクして絶縁層を形成した。その後、マスクを除去して Al 層を成膜することで、長さ 30mm、幅 20mm の薄板型 TPG を実現した。試作した薄板型 TPG は長さ方向の温度勾配に起因して薄板の両面に電位差が発生するものであり、これを含む開回路において測定した当該発電機のゼーベック係数は酸化させないそれのおよそ 3 倍であった (図 5)。また閉回路により発電特性を評価したところ (図 6)、40K なる低温差においておよそ 0.3 μ W の出力を得た。

(8) 薄板型熱発電機の高効率化

長さ 15mm、幅 5mm の薄板型 TPG を試作したところ、ゼーベック係数の値は変わらず、形成される温度勾配を保持したまま小型化に成功した。さらに小型化した薄板型 TPG を熱電素子板として厚さ方向に積層することにより、温度勾配と電位勾配とが直交する独自の積層薄板型 TPG を実現した (図 7)。積層枚数の異なる積層薄板型 TPG を試作して性能を評価することにより、当該積層薄板型 TPG においては性能が最適となる積層枚数が存在することを明らかにした。また T 型の薄板型 TPG を試作して評価することにより、異種金属界面の電気抵抗の低減が、さらに Cu 層を成膜した薄板型 TPG を試作して評価することに

より、第 2 金属層の元素の選択が、それぞれ性能向上に有用であることを明らかにした。

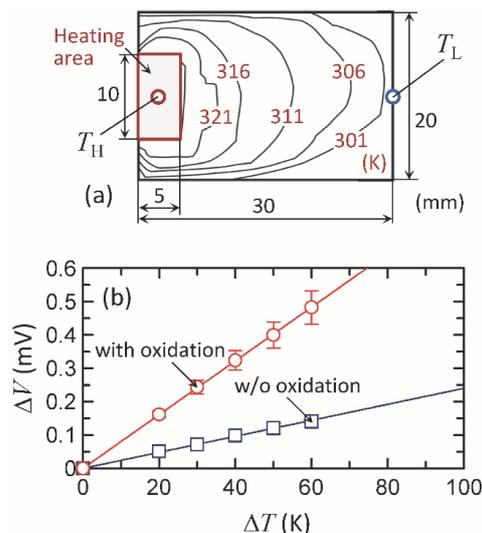


図 5 開回路測定による性能評価 (Reprinted with permission from (1). Copyright (2016), Elsevier)

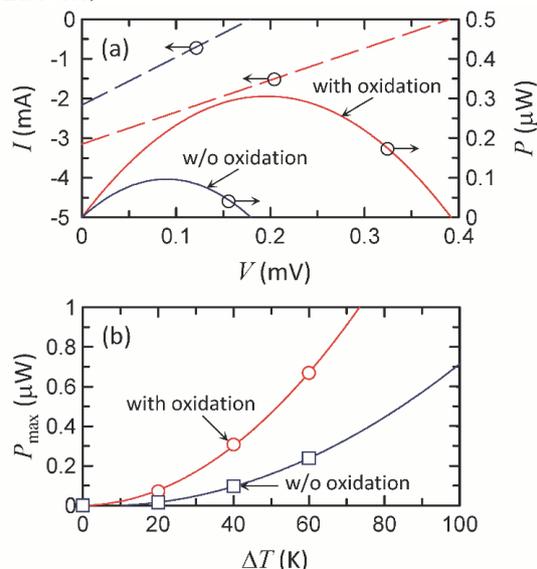


図 6 閉回路測定による性能評価 (Reprinted with permission from (1). Copyright (2016), Elsevier)

(9) 体温を利用した生体センサの駆動

実現した薄板型 TPG を使い、体温と外環境との極低温差から発電して各種センサを駆動するための仕様について検討した。通常、各種センサは駆動時に大きな電力を必要とすることから昇圧回路を用いることとし、また各種センサの消費電力に応じて積層枚数を決定した積層薄板型 TPG を用いることにより無電源環境下において連続的に生体情報を取得できる見通しを得た。

また実現した薄板型 TPG を活用した生体情報取得に関して、人の健康状態の監視に資する爪の構造弾性率を測定する手法を新たに開発し (図 8)、実際に開発した手法により爪の力学的特性変化が検知できることを実証した。

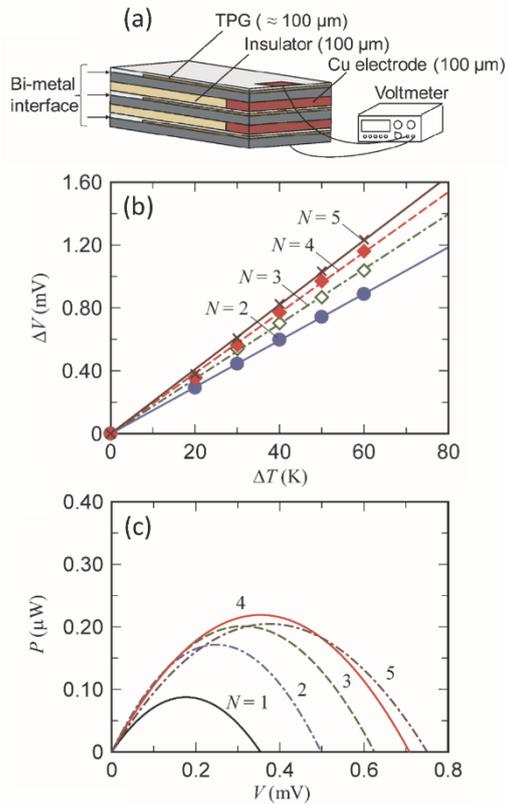


図7 積層型熱発電機の性能評価 (Reprinted with permission from (3). Copyright (2017), The Japan Society of Applied Physics)

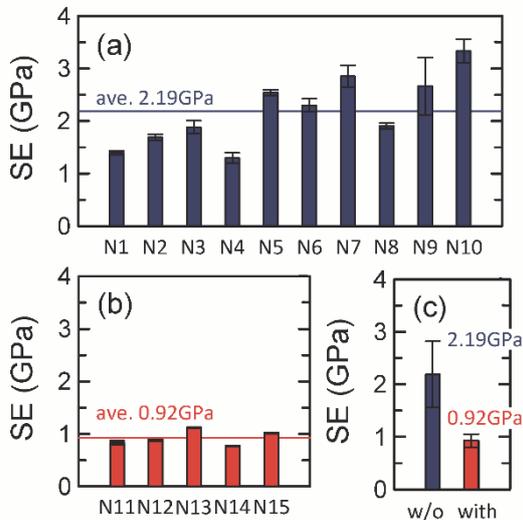


図8 爪の構造弾性率とマニキュアの塗布による変化

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

1. H. Tohmyoh, T. Daimon, N. Ohgi, T-Shaped, Plate-Type Thermoelectric Power Generator for Realizing the Higher Power Density at a Small Temperature Difference, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有, 2018, 印刷中

2. T. Daimon, H. Tohmyoh, A Multi-Layered Thermoelectric Power Generator Fabricated by Stacking Thermoelectric Plates, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有, Vol.56, 2017, 06GN05, 5 pages
DOI: 10.7567/JJAP.56.06GN05
3. S. E. Siukonen, T. Daimon, H. Tohmyoh, Multi-Layered Microwire with a Bi-Metal Tip for Thermoelectric Applications, *Applied Thermal Engineering*, 査読有, Vol.107, 2016, pp.747-749
DOI: 10.1016/j.applthermaleng.2016.07.041
4. H. Tohmyoh, T. Daimon, A Plate-Type Thermoelectric Power Generator with an Oxidized Bi-Metal Interface for Power Generation from a Small Temperature Difference, *Microelectronic Engineering*, 査読有, Vol.159, 2016, pp.38-41
DOI: 10.1016/j.mee.2016.02.030

[学会発表] (計 26 件)

1. 燈明泰成, 福田明紘, 木村康裕, ジュール熱により改質した金属マイクロ細線の降伏強度について, 高温強度・破壊力学合同シンポジウム (第55回高温強度シンポジウム, 一第18回破壊力学シンポジウム), 2017年12月9日, くまもと県民交流館パレア (熊本市).
2. H. Tohmyoh, T. Daimon, N. Ohgi, T-Shaped, Plate-Type Thermoelectric Power Generator for Realizing the Higher Power Density at a Small Temperature Difference, The 17th International Conference on Micro and Nanotechnology for Power Generation and Energy Conversion Applications (Power MEMS 2017), 2017年11月15日, Kanazawa Bunka Hall (金沢市).
3. 燈明泰成, 大門勲典, 鉄表面の酸化による薄板型熱発電機の出力向上について, 日本材料学会 第3回材料 Week, 2017年10月11日, 京都テルサ (京都市).
4. 福田明紘, 燈明泰成, ジュール熱による銅マイクロ細線の結晶粒制御について, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス, 2017年10月8日, 北海道大学 (札幌).
5. 谷口大樹, 燈明泰成, つめの構造弾性率の測定と曲げ剛性について, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス, 2017年10月7日, 北海道大学 (札幌).
6. 山口寛太, 燈明泰成, 通電下にある白金細線周りの熱的境界条件について, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス, 2017年10月8日, 北海道大学 (札幌).
7. 燈明泰成, 星祥吾, 樋渡恭平, 金属細線の電熱問題におけるマイクロスケール電位差法の適用について, 日本非破壊検査協会 平成29年度 秋季講演大会, 2017年10月5日, 福岡国際会議場 (福岡市).

8. K. Yamaguchi, H. Tohmyoh, On the Thermal Boundary Conditions around Metallic Thin Wires having Different Diameters under the Current Supply, 19th International Conference on Electronics Materials and Packaging (EMAP2017), 2017年9月27日, Kunibiki Messe (松江市).
 9. 燈明泰成, ジュール熱を活用した金属細線の接合と改質 (講師), 日本機械学会 2017年度年次大会, 2017年9月5日, 埼玉大学 (さいたま市).
 10. 燈明泰成, 異種金属細線同士を接合するのに必要な電流値の破壊力学的考察, 日本材料学会 第66期通常総会・学術講演会, 2017年5月27日, 名城大学天白キャンパス (名古屋市).
 11. 山口寛太, 燈明泰成, 通電下にある金属細線周りの熱的境界条件におよぼす寸法の影響について, 日本機械学会東北支部 第52回総会・講演会, 2017年3月14日, 東北大学工学部 青葉記念会館 (仙台市).
 12. 大門叡典, 燈明泰成, 低温度差発電のための薄板型熱発電機の試作とその性能評価, 日本機械学会東北支部 第52回総会・講演会, 2017年3月14日, 東北大学工学部 青葉記念会館 (仙台市).
 13. 福田明紘, 燈明泰成, 電流付与下における金属マイクロ細線の結晶粒成長について, 日本機械学会 第24回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2016), 2016年11月25日, 早稲田大学国際会議場 (新宿区).
 14. 燈明泰成, 異種金属のマイクロ細線をジュール熱により接合するのに必要な電流について, 日本機械学会 第24回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2016), 2016年11月25日, 早稲田大学国際会議場 (新宿区).
 15. T. Daimon, H. Tohmyoh, Enhancement of Efficiency for Power Generation of a Plate-Type Thermoelectric Power Generator by Stacking the Thermoelectric Plates, 29th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2016), 2016年11月10日, ANA Crowne Plaza Kyoto (京都市).
 16. H. Tohmyoh, A Micro-Scale Potential Drop Technique for Electro-Thermal Problems of Metallic Thin Wires (Invited Talk), EMN Meeting on Alloys and Compounds, 2016年10月11日, Mantra Bell City Hotel (Melbourne, Australia).
 17. 谷口大樹, 燈明泰成, 曲げ試験によるつめの構造弾性率の測定について, 日本機械学会 M&M2016 材料力学カンファレンス, 2016年10月10日, 神戸大学 六甲台第二キャンパス (神戸市).
 18. 星祥吾, 燈明泰成, マイクロスケール電位差法による金属細線の電気伝導率測定について, 日本非破壊検査協会 平成 28年度秋季講演大会, 2016年10月6日, ハーネル仙台 (仙台市).
 19. H. Tohmyoh, Y. Matsudo, Elastic-Plastic Properties of Cu Microwires Modified with Joule Heat, Asia-Pacific Conference on Fracture and Strength 2016 (APCFS2016), 2016年9月20日, Toyama International Conference Center (富山市).
 20. 燈明泰成, 松土陽平, 電流により熱処理した銅マイクロ細線の降伏強度について, 日本材料学会 第65期通常総会・学術講演会, 2016年5月29日, 富山大学五福キャンパス (富山市).
 21. 大門叡典, 燈明泰成, 鉄の薄板からの熱発電機の作製と性能評価, 日本機械学会東北支部 第51期総会・講演会, 2015年3月11日, 東北大学工学部青葉記念会館 (仙台市).
 22. H. Tohmyoh, T. Daimon, Thermoelectric Power Generation from an Iron Plate (Invited Talk), EMN Meeting on Thermoelectric Materials, 2015年2月22日, Radisson Resort Orlando-Celebration (Orlando, Florida, USA).
 23. 大門叡典, 燈明泰成, 異種金属界面を有する薄板型熱発電機の高効率化について, 日本機械学会 第7回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 2015年10月28日, 朱鷺メッセ (新潟市).
 24. 燈明泰成, き裂の進展現象と細線接触部の熔融現象との類似性に関して, 第17回破壊力学シンポジウム, 2015年10月14日, 京都テルサ (京都市).
 25. H. Tohmyoh, T. Daimon, Plate-Type Thermoelectric Power Generator Having Oxidized Bi-Metal Interface, 41th Micro and Nano Engineering, 2015年9月22日, World Forum (The Hague, The Netherlands).
 26. 燈明泰成, 金属極細線の接合と機能の創出 (招待講演), 平成27年度化学系学協会東北大会, 2015年9月13日, 弘前大学文京キャンパス (弘前市).
- 〔その他〕
ホームページ等
<http://king.mech.tohoku.ac.jp/saka/index.htm>
6. 研究組織
 - (1) 研究代表者
燈明 泰成 (TOHMYOH, HIRONORI)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：50374955
 - (2) 研究分担者
なし
 - (3) 連携研究者
なし