

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03922

研究課題名（和文）エネルギーハーベスティング型熱電デバイスの界面熱抵抗メカニズムの解明

研究課題名（英文）Measurement of Interfacial Thermal Resistance of Energy Harvesting Thermoelectric Material

研究代表者

田中 三郎（TANAKA, Saburo）

日本大学・工学部・准教授

研究者番号：30713127

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、熱電材料などに使用されているビスマスと基板材との接触部分などで起こる界面熱抵抗を薄膜の熱伝導率計測技術である3オメガ法を用いて簡易的に計測した。本結果を応用することで今後さらに普及すると考えられるIoT用センサーの電力供給のための熱電発電デバイスや超高性能半導体チップの界面熱抵抗による熱設計に寄与できる。さらに、既往研究で確立されている熱電性能向上の低次元効果やフォノン粒子の散乱効果などに加え、フォノン解析による界面熱抵抗の物理的なメカニズム解明の一助になることが予測され、熱電発電のみならず伝熱技術を利用したシステムに応用可能と考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって、既往研究で確立されている熱電性能向上の低次元効果やフォノン粒子の散乱効果などに加え、材料間の界面熱抵抗を考慮した小型熱電発電デバイスの高効率な設計に応用が可能となり、加えてフォノン解析による界面熱抵抗の物理的なメカニズムが解明されることで、熱電発電のみならず伝熱技術を利用したシステムに応用可能と考えられ、その意義は学術的にも社会的にもインパクトは極めて大きい。

研究成果の概要（英文）：We measured the interfacial thermal resistance occurring at the contact points between bismuth, used in thermoelectric materials, and the substrate material using the relatively simple 3-omega method, a technique for measuring the thermal conductivity of thin films. The results of this study can be applied to thermoelectric generation devices for powering IoT sensors, which are expected to become more widespread, as well as to the thermal design of high-performance semiconductor chips by addressing interfacial thermal resistance. Additionally, this study is anticipated to contribute to the understanding of the physical mechanisms of interfacial thermal resistance through phonon analysis, complementing the previously established effects of low-dimensionality and phonon scattering on enhancing thermoelectric performance. These findings are not only relevant to thermoelectric power generation but also applicable to systems utilizing heat transfer technology.

研究分野：熱工学

キーワード：界面熱抵抗 熱伝導率 薄膜

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

エネルギーハーベスティング技術向上の加速を行うためには、高効率な微小未利用エネルギーの回収が重要であり、有限なエネルギー資源である石油、石炭や天然ガスなどを代表とする化石燃料の使用量を抑えることができるため、エネルギー資源問題の対策として期待されている。エネルギーマネジメントを効率的に行うためには、エネルギー利用監視センサーが必要となり、それらを駆動するためにもエネルギーを用いるため、そのエネルギーロスが懸念される。そこで、そのエネルギーロスを抑えるため、熱から直接発電することができる熱電発電技術は、体温と外気との温度差からでも発電できるほど質の低い熱エネルギー利用可能なことや可動部の無い固体素子として使用できることからメンテナンスフリーで長寿命なことなどが利点としてあり、実用例としては、無人惑星探査機や欧米の排熱回収利用などが挙げられ、身の回りの熱エネルギーを有効活用し、エネルギーマネジメントに役立たせることが可能となる。しかしながら、その有用性一方で、高いコストや低い熱電変換効率が熱電発電の普及を妨げており、さらなるその効率の向上が必須と考えられる。熱電変換効率は、温度  $T$  [K]、ゼーベック係数  $S$  [V/K]、導電率  $\sigma$  [S/m] および熱伝導率  $\lambda$  [W/(m·K)] からなる無次元性能指数  $ZT (= S^2 \cdot \sigma \cdot T / \lambda)$  で表され、 $ZT$  が高いほど発電効率が高いことが知られており、薄膜技術を用いたナノ構造化により、熱伝導に寄与するフォノン(格子振動を量子化したもの)輸送メカニズムについて明らかにしてきた。熱電発電を実用化させるためには、 $ZT$  を 4 以上にすることが求められているため、単純に  $ZT$  のみを向上させていくだけでは非常に困難であると考えられる。このような状況のもと、デバイスやシステム全体の効率を向上させるアイデアとして、材料のナノ構造などの低次元化が挙げられる。また、熱電材料の  $ZT$  のみを向上させてもデバイスやシステムなどに組み込んだ際に、異種材料の界面熱抵抗によるエネルギーロスの低減は、微小エネルギーの回収を目指すエネルギーハーベスティング技術などでは重要な要素と考えられ、これらを実験的に評価することが背景としてあった。

### 2. 研究の目的

本研究では、熱電材料などに使用されているビスマス (Bi) と基板材との接触部分などで起こる界面熱抵抗を薄膜の熱伝導率計測技術を用いて簡易的に計測する。また、本結果を応用することで今後さらに普及すると考えられる IoT 用センサーの電力供給のための熱電発電デバイスへの応用や超高性能半導体チップの界面熱抵抗による熱設計寄与することを目的とする。さらに、既往研究で確立されている熱電性能向上の低次元効果やフォノン粒子の散乱効果などに加え、フォノン解析による界面熱抵抗の物理的なメカニズム解明の一助になることが予測され、熱電発電のみならず伝熱技術を利用したシステムに応用可能と考えられる。

### 3. 研究の方法

#### (1) 薄膜の作製

界面熱抵抗を評価するため、室温付近で最も高性能な熱電半導体のビスマステルライド ( $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ) 系の構成元素であるビスマス (Bi) 薄膜を生成した。薄膜の熱抵抗計測には、薄膜の熱伝導率計測で用いられる 3 オメガ法を用いた。また、界面熱抵抗は、膜厚の異なる薄膜サンプルを成膜し、その熱抵抗と膜厚との関係から算出した。サンプルの膜厚計測には光学式白色干渉計を使用した。3 オメガ法には、ヒーターおよび温度センサーを兼ねる金属薄膜細線をサンプル上に作製し、交流電流をその細線に流すことでジュール発熱を起こし、金属薄膜細線に掛かる  $1\omega$  電圧の 1000 分の 1 程度の  $3\omega$  電圧を検出する必要がある。本研究では図 1 (a) のようなハードウェアおよびソフトウェア  $3\omega$  電圧を取得する方法を用いて実施した (図 2)。一般的には、この金属薄膜細線はウェットプロセスにより作製されるが、本研究の対象となる薄膜はウェットプロセスには耐久性が低いいため、作製した薄膜の剥離に繋がる。そのため、シャドウマスクによる金属薄膜細線の作製を行った (図 1 (b))。  $3\omega$  電圧の検出結果を図 2 に示す。温度依存性がある金属薄膜細線の波形から温度依存性が小さい可変抵抗の波形を差し引くことで 3 倍の  $3\omega$  電圧を検出した。

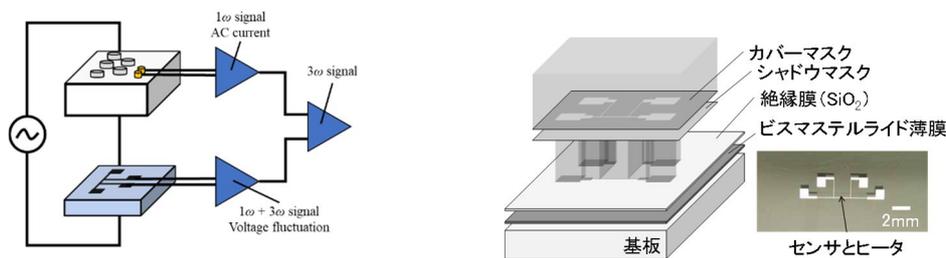


図 1 (a) 3 オメガ法システム概略図 (b) 3 オメガ法用センサー

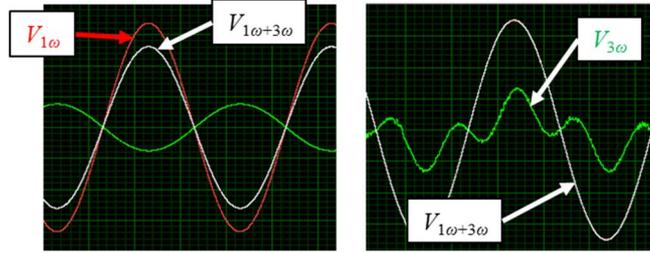


図2 3 $\omega$  電圧検出結果

#### 4. 研究成果

材料を薄膜化することで、内部の構造が変化し、バルク材料とは大きく異なった性質を示す。そのため、機器の熱設計を行う際には、使用が想定されるあらゆる薄膜材料の熱物性のデータシートが必要である。本研究では、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基板上に熱半導体である  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  を構成する Bi 薄膜を成膜し、3 オメガ法により熱伝導率および熱抵抗を測定した。サンプル基板とリファレンス基板の構成を図3に示す。サンプル基板は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基板上に Bi、 $\text{SiO}_2$  絶縁膜、金属細線の順に構成され、リファレンス基板は Bi のみを抜いて構成されている。3 $\omega$  電圧  $V_{3\omega}$  と交流電流の周波数  $f$  との関係を図4に、基板の温度上昇  $\Delta T_s$  と周波数  $f$  との関係を図5に示す。全てのサンプル基板とリファレンス基板において、3 $\omega$  電圧  $V_{3\omega}$  は周波数  $f$  の増加に伴い減少した。また、リファレンスの3 $\omega$  電圧  $V_{3\omega}$  に対して Bi 薄膜を成膜したサンプルのそれは高くなる傾向を示した。サンプル毎に印可した電圧が異なるため、3 $\omega$  電圧  $V_{3\omega}$  と Bi 薄膜の膜厚  $t$  との関係性は得られなかった。これは、サンプル毎に作製した金属薄膜細線のセンサーの電気抵抗をコントロールすることが困難であったことが挙げられ、今後の課題として残った。

得られた 3 $\omega$  電圧  $V_{3\omega}$  と金属細線電気抵抗の温度依存性  $dR/dT$  との関係を用いて金属細線の温度上昇  $\Delta T$  を求めた。温度上昇  $\Delta T$  と周波数  $f$  との関係を図5に示す。本研究の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  基板上の Bi 薄膜の膜厚は、それぞれ  $0.31\ \mu\text{m}$ 、 $0.40\ \mu\text{m}$ 、 $0.45\ \mu\text{m}$  であり、全てのサンプル基板は、リファレンス基板より高い  $\Delta T$  を示した。また、温度上昇  $\Delta T$  は Bi 薄膜の膜厚増加に伴って上昇する傾向を示し、薄膜熱抵抗の増加を計測により求められていることが分かる。

測定した  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Bi 薄膜の熱抵抗  $R_f$  と Bi 薄膜の膜厚  $t$  との関係を図6に示す。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基板上の膜厚が  $0.31\ \mu\text{m}$  の Bi 薄膜の熱抵抗は  $1.8 \times 10^{-6}\ (\text{m}^2 \cdot \text{K})/\text{W}$ 、 $0.40\ \mu\text{m}$  の場合は  $1.9 \times 10^{-6}\ (\text{m}^2 \cdot \text{K})/\text{W}$ 、 $0.45\ \mu\text{m}$  の場合  $2.0 \times 10^{-6}\ (\text{m}^2 \cdot \text{K})/\text{W}$  となり、膜厚の増加に伴って線形的な増加傾向となった。この結果から  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Bi 間の界面熱抵抗を見積ると  $1.2 \times 10^{-6}\ (\text{m}^2 \cdot \text{K})/\text{W}$  となった。この結果から、異種材料の界面熱抵抗を簡易的に計測することができ、さらに多層膜化することでその熱抵抗を実験的に評価することも可能となる。

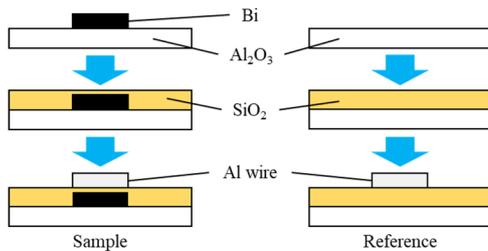


図3 サンプルおよびリファレンスの成膜プロセス

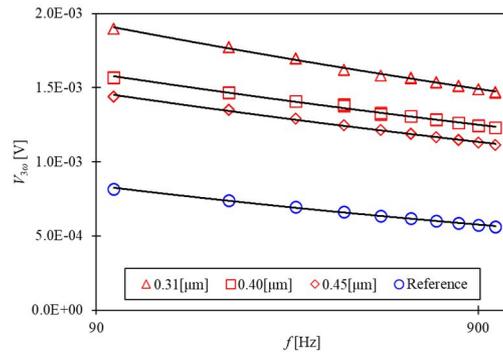


図4 3 $\omega$  電圧と周波数との関係

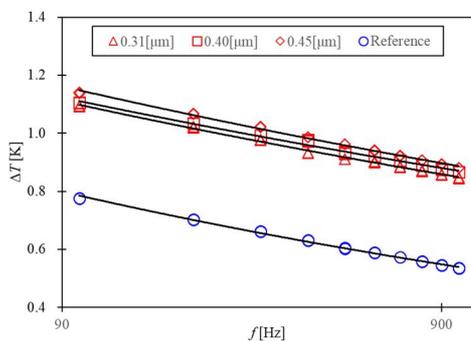


図5 温度上昇と周波数との関係

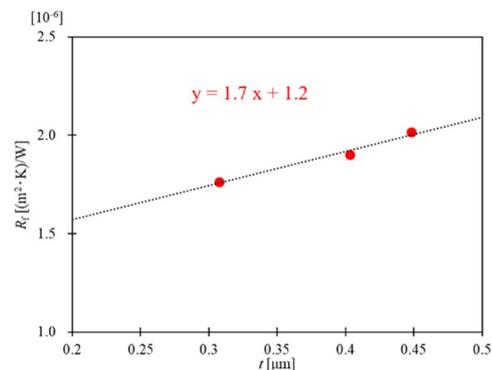


図6 熱抵抗と膜厚との関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Abe Haruto, Takashiri Masayuki, Hara Shunsuke, Arai Takaya, Sasaki Naoe, Tanaka Saburo	4. 巻 248
2. 論文標題 Performance evaluation of flexible thermoelectric generator with Bi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub> thin-film	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Applied Thermal Engineering	6. 最初と最後の頁 123258 ~ 123258
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.applthermaleng.2024.123258	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 田中三郎, 阿部遥斗, 新井隆也, 宮岡大, 佐々木直栄
2. 発表標題 3オメガ法を用いた熱物性計測
3. 学会等名 第65回日本大学工学部学術研究報告会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 新井隆也, 阿部遥斗, 宮岡大, 佐々木直栄, 田中三郎
2. 発表標題 熱電半導体に関する研究
3. 学会等名 第65回日本大学工学部学術研究報告会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 阿部遥斗, 新井隆也, 宮岡大, 佐々木直栄, 田中三郎
2. 発表標題 フレキシブル熱電発電デバイスに関する研究
3. 学会等名 第65回日本大学工学部学術研究報告会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 新井隆也, 阿部遥斗, 宮岡大, 佐々木直栄, 田中三郎
2. 発表標題 フレキシブル熱電発電デバイスの性能評価
3. 学会等名 日本機械学会東北支部第58期総会・講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 新井隆也, 阿部遥斗, 宮岡大, 田中三郎, 佐々木直栄
2. 発表標題 3 法を用いた界面熱抵抗の評価
3. 学会等名 第60回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 阿部遥斗, 新井隆也, 宮岡大, 佐々木直栄, 田中三郎
2. 発表標題 フレキシブルフィンを用いた熱電デバイスの性能評価
3. 学会等名 第60回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 阿部 遥斗, 新井 隆也, 宮岡 大, 佐々木 直栄, 田中 三郎
2. 発表標題 フィン型熱電デバイスの性能評価
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 新井 隆也, 阿部 遥斗, 小長 遼太, 高尻 雅之, 宮岡 大, 佐々木 直栄, 田中 三郎
2. 発表標題 薄膜型熱電素子の性能評価
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 阿部 遥斗, 新井 隆也, 宮岡 大, 佐々木 直栄, 田中 三郎
2. 発表標題 薄膜型熱電発電デバイスの評価
3. 学会等名 第22回日本伝熱学会東北支部学生発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 新井 隆也, 阿部 遥斗, 小長谷 遼太, 高尻 雅之, 宮岡 大, 佐々木 直栄, 田中 三郎
2. 発表標題 薄膜型熱電素子の電気的特性評価
3. 学会等名 第22回日本伝熱学会東北支部学生発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松浦 裕真, 阿部 遥斗, 新井 隆也, 宮岡 大, 佐々木 直栄, 田中 三郎
2. 発表標題 薄膜熱電素子を用いた熱電デバイスに関する研究
3. 学会等名 第64回日本大学工学部学術研究報告会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松浦 裕真, 阿部 遥斗, 新井 隆也, 宮岡 大, 佐々木 直栄, 田中 三郎
2. 発表標題 エネルギーハーベスティング型熱電デバイスに関する研究
3. 学会等名 日本機械学会東北支部第57期秋季講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関