

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 26 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24686016

研究課題名(和文)線と面の異種金属ナノ溶接原理の確立と熱電機能の創出

研究課題名(英文) Establishment of Principle for Welding Line and Plane of Fine Scale Dissimilar Metals and Creation of Thermoelectric Functions

研究代表者

燈明 泰成 (TOHMYOH, HIRONORI)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50374955

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,400,000円

研究成果の概要(和文)：マイクロ/ナノワイヤなる各種金属極細線の応用に不可欠なジュール熱ナノ溶接に関し、微小接触部の溶融現象を支配する因子を特定して、異なる直径の細線同士、あるいは細線と基板との異種金属溶接を高確度を実現するための科学基盤を確立した。更に原子拡散現象を利用して作製した熱電ナノワイヤと、確立した科学基盤を活用して、薄板型熱発電機や、極微小熱電プローブを作製するなど、グリーン・イノベーションに資する革新的な機能を創出することに成功した。

研究成果の概要(英文)：Regarding the Joule heat welding of fine scale dissimilar metals, a parameter which governs the melting phenomenon at the contacts of fine scale metals has been proposed, and the scientific basis for welding thin wires having different diameters or for welding thin wire to the substrate has been established. Moreover, the thermoelectric nanowires have been successfully fabricated by the use of atomic migration, and by gathering the above knowledge and achievements, a plate-type thermoelectric generator and the thermoelectric probes, which greatly contribute the future green innovation, have been realized.

研究分野：工学

キーワード：ナノ接合 ジュール熱 マイクロ/ナノ材料 異種金属 熱電機能

1. 研究開始当初の背景

異種金属の接点を含む電気回路において、電気と熱の両方に関連する熱電効果が現れる。例えばゼーベック効果は、異種金属接点間の温度差に起因して起電力が発生する現象であり、温度計測のための熱電対等に広く利用されている。また古くから余剰な熱を電気に変換する熱発電機が構想されてきたが、当該熱電変換効率は他のエネルギー変換技術のそれに比べて低く、熱発電は一部の微弱電力源のみでしか世界的に利用できていない。ところでナノワイヤに適量の不純物をドーピングしたり、酸化させることにより、驚くべき熱電効果が生じることが発見されている。そこでナノワイヤを活用して上述の排熱を有効に利用する等、新しい機能の創出が期待されるが、これにはナノ材料を活用する術が不足している。

ナノ材料活用術の重要な手段として、金属・半導体ナノワイヤ、カーボンナノチューブや高分子ナノファイバといった微細材料同士を溶接する手法の研究が世界的に進められている。中でも高密度電子ビームを用いる手法は現状において汎用性に富む優れた手法であるが、電子ビームが届きにくい影部の溶接が困難であるため、実用上重要な三次元構造を構築するのに不向きである。一方、研究代表者らはナノワイヤ等の導電性極細線同士を対向して接触させ、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て、当該極細線同士を自発的に溶接する新しい手法を提案している (H. Tohmyoh & S. Fukui, Phys. Rev. B 80, 2009, 155403)。

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ものである。これまで極細線同士の溶接で実績のある独自のナノ溶接手法を極細線と面なる実用上重要な対象に拡張すると共に、異種金属のナノ溶接をも高精度に実現する原理を確立する。高度化した当該溶接手法と、原子拡散現象を利用する独自の手法により新規に作製するレアメタルフリー熱電ナノワイヤとを利用して、異種金属ナノ接点を多数含む熱電回路を実現し、身近な排熱を有効利用するためのナノ熱発電機が実現できると着想した。

2. 研究の目的

本研究は、マイクロ/ナノワイヤなる各種金属極細線の応用に不可欠なジュール熱ナノ溶接に関し、ナノコンタクト部の電気・熱物理学の科学基盤を構築して、異種金属・異径寸法なる極細線のナノ溶接を高精度に実現するための原理を確立することを目的とする。また、組織的、幾何学的に制御した高品質な異種金属界面で生じる熱電現象を利用して、極微小熱電プローブやナノ熱発電機なる、グリーン・イノベーションに資する革新的な機能を創出することを目指す。

3. 研究の方法

本研究は8項目に大別される。(1) 大気中で実験可能な三次元ナノ溶接機の構築では、走査電子顕微鏡、あるいは高倍率デジタルマイクロスコブ観察下で様々な金属極細線を溶接する実験系を構築し、これを活用して、(2) 異種金属極細線同士のナノ溶接条件を見出す。(3) 極細線と面のナノ溶接では、極細線と基板との溶接条件を新たに見出し、更に異種金属ナノ溶接条件と、同種金属に対する線と面のナノ溶接条件を駆使して、(4) ニードル先端に組み込まれた極微小熱電プローブを試作する。(5) レアメタルフリー熱電ナノワイヤの作製では、結晶レベルで生じるミクロな応力勾配に起因して生じる原子拡散現象を利用して熱電ナノワイヤを新規に作製し、更に(6) 極細線と面の異種金属ナノ溶接について検討した後に、異種金属ナノ接点を多数有する(7) ナノ熱発電機を実現する。最後に、これまでの研究成果を集約して、異なる外形寸法の様々な微細材料同士を高精度に溶接するための要領と、ナノ溶接の応用指針を体系化した(8) ナノ溶接マップを策定する。

4. 研究成果

(1) 大気中で実験可能な三次元ナノ溶接機の構築

現有のピエゾステージ、マニピュレータ等から成り、異なる環境 [走査電子顕微鏡内、および大気中 (高倍率デジタルマイクロスコブ)]

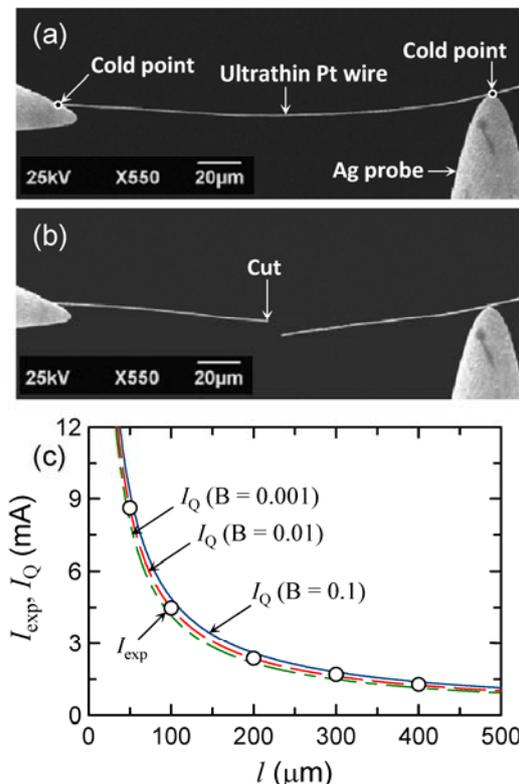


図1 金属極細線を切断するのに必要な電流の実験値と理論値 (Reprinted with permission from (9). Copyright (2013), American Institute of Physics)

(4) 電極基板上に自立した極微小熱電プローブの試作

電極基板上に固定した直径 $5\mu\text{m}$ の Pt、および W 細線をジュール熱溶接して、極微小熱電プローブを実現し、当該熱電プローブのゼーベック効果とペルチェ効果の両方を観察することに成功した。また直径 $100\mu\text{m}$ の Fe、Al 細線をジュール熱溶接した熱電回路のゼーベック係数を測定すると共に、当該熱電回路の細線長が細線内温度勾配と発生する熱起電力に及ぼす影響を調査した (図 5)。実験結果および構築した熱伝導モデルより、当該熱電回路には省スペースで効率的な熱起電力を発生する最適な回路長が存在することを明らかにした。これは効率的なナノ熱発電機を実現するために重要な知見である。

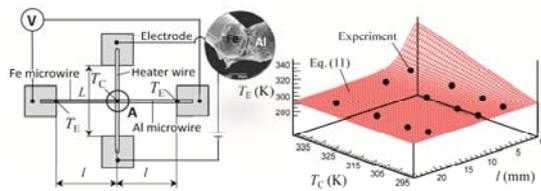


図 5 熱電回路の試作と、回路長が細線内温度勾配に及ぼす影響 (Reprinted with permission from (1). Copyright (2015), Elsevier)

(5) レアメタルフリー熱電ナノワイヤの作製

材料内部の応力勾配を駆動力とする原子拡散現象を利用して、Fe 平板の表面に大量の酸化鉄ナノワイヤを作製することに成功した。表面を酸化させた Fe 平板に曲率を与えて加熱することで、平板内部の Fe 原子が拡散し、拡散した原子が表面酸化膜の隙間より排出されることでナノワイヤが作製できた (図 6)。結晶構造解析の結果、当該ナノワイヤは酸化鉄 (Fe_3O_4) ナノワイヤであった。

その他、本研究で構築した熱伝導モデルを活用して金属細線を軟化させる省エネルギー熱処理手法を考案し、実際に当該手法により熱処理した直径 $25\mu\text{m}$ の Cu 細線の機械的特性評価実験を実施して手法の妥当性を確認した (図 7)。

(6) 極細線と面の異種金属ナノ溶接

高精度に細線と面の異種金属溶接を実現するために、細線比の異なる異種金属細線系の伝熱問題を取り扱った (図 8)。電流付与

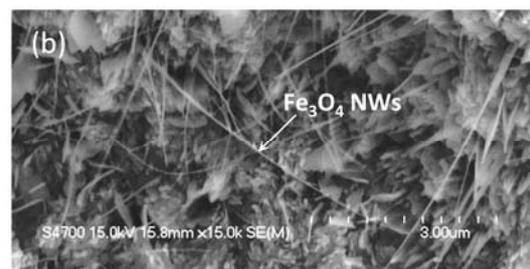


図 6 原子拡散現象を利用して作製した酸化鉄ナノワイヤ

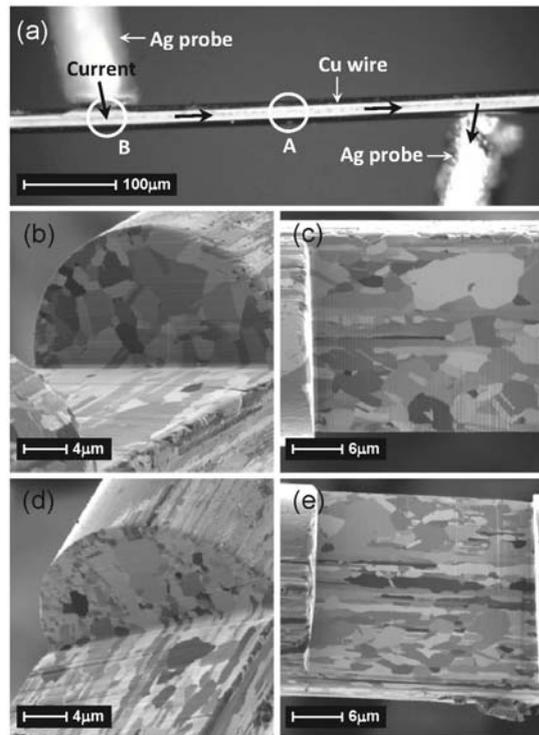


図 7 電流を用いた金属極細線の省エネルギー熱処理 (Reprinted with permission from (4). Copyright (2013), The Japan Society of Applied Physics)

下において形成される当該細線系の非対称温度分布において、細線切断位置は不連続であるが、切断に要する電流値が連続であることを見出し、この知見に基づき異種金属接触部の熔融現象を支配する因子を提案すると共に、実際に直径 $25\mu\text{m}$ の Cu、Al マイクロ細線を用いた実験により当該因子の有用性を確認した (図 9)。この因子と、これまでに算出することに成功している臨界膜厚値より、異種金属の極細線と基板との溶接条件を見出すことを可能にした。

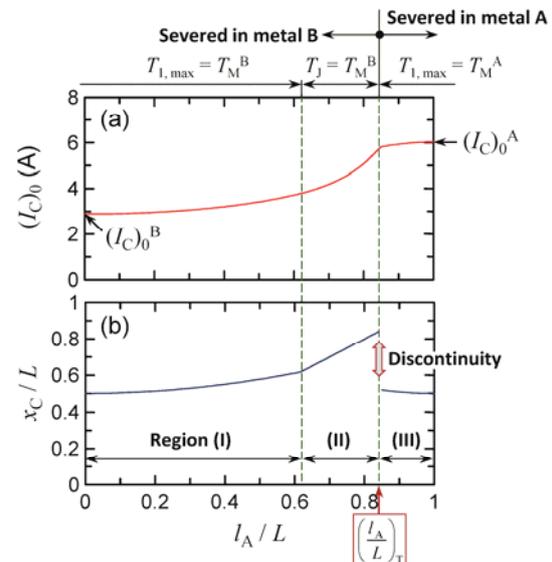


図 8 異種金属細線系を切断するのに必要な電流値と切断位置

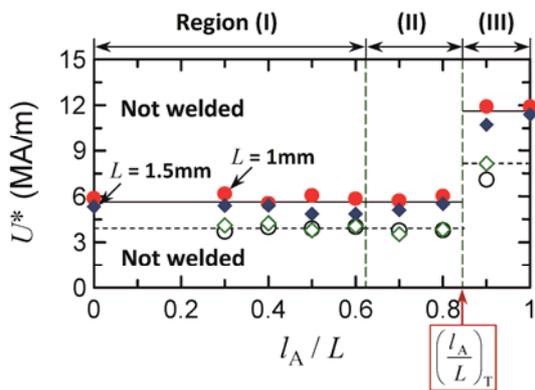


図9 異種金属細線同士の溶接条件

(7) ナノ熱発電機の実現

Fe 平板と Al 薄膜とを組み合わせ、当該異種金属界面に作製に成功している Fe₃O₄ ナノワイヤを内包することで、異種金属界面に多数のナノ接点を内包した、独自の薄板型熱発電機を実現した (図 10)。この薄板型熱発電機は異種金属界面側と、他方の絶縁界面側との間に生じる温度差により熱起電力を発生するものである。実際に当該熱発電機をモータ表面に貼り付け、モータに負荷を与えることで上昇したモータの表面温度と外環境との、20K 程度のわずかな温度差を利用して、実際に発電が可能であることを確認した。また界面に内包させた Fe₃O₄ ナノワイヤが発電効率の向上に有益であることを確認した。

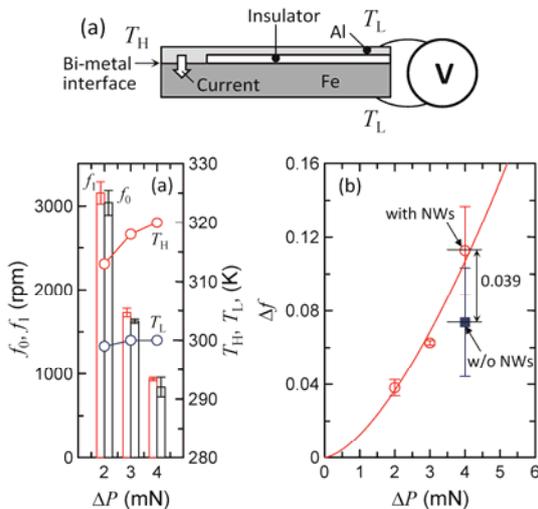


図 10 実現した薄板型熱発電機と性能評価試験結果

(8) ナノ溶接マップの策定

これまでの研究成果を集約して、同種および異種金属の組み合わせであって、細線同士 (同径、異径)、あるいは細線と基板など、様々な微細材料同士を高精度にジュール熱溶接するための要領を整理したナノ溶接マップを策定し、本研究課題で取り扱った溶接手法の汎用性を飛躍的に向上させることに成功した。

なお研究代表者 (燈明泰成) は以上の研究成果等 (業績名: マイクロ/ナノ接触界面での特異物理現象の解明と利用の研究) により平成 26 年度 科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞を受賞した。

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 12 件)

1. A. Watanabe, H. Tohmyoh, Fabrication of Thermoelectric Circuits by Joining Metallic Microwires and the Effect of the Length of the Wire on the Thermoelectromotive Force, Renewable Energy, 査読有, Vol.83, 2015, pp.41-46
DOI: 10.1016/j.renene.2015.04.018
2. T. Sunagawa, H. Tohmyoh, Welding Dissimilar Metal Microwires by Joule Heating, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol.54, 2015, pp.06FL01, 5 pages
DOI: 10.7567/JJAP.54.06FL01
3. H. Tohmyoh, M. Fujimori, Joule Hat Welding of Thin Wires to Thin Films, Mechanical Engineering Journal, 査読有, Vol.1, 2014, pp.1-10
DOI: 10.1299/mej.2014smm0010
4. 燈明泰成, 渡邊彬人, 砂川拓也, 微小な異種金属接合部を得るためのジュール熱溶接, 第20回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム論文集, 査読有, Vol.20, 2014, pp.345-348
5. H. Tohmyoh, M. Ishihara, Local Modification of Micro Cu Wires with Current, Applied Physics Express, 査読有, Vol.6, 2013, 077302, 4 pages
DOI: 10.7567/APEX.6.077302
6. M.A.S. Akanda, H. Tohmyoh, Strength and Fracture Behavior of Ultrathin Pt Wires, International Journal of Fracture, 査読有, Vol.180, 2013, pp.269-274
DOI: 10.1007/s10704-013-9805-8
7. H. Tohmyoh, A. Watanabe, Fabrication of Single-Crystalline Iron Oxide Fe₃O₄ Nanowires from an Oxidized Fe Plate Subjected to Bending Stress, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol.82, 2013, 044804, 4 pages
DOI: 10.7566/JPSJ.82.044804
8. M. Fujimori, H. Tohmyoh, Welding Thin Pt Wires with Dissimilar Diameters by Joule Heating, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol.52, 2013, 06GH01, 4 pages
DOI: 10.7567/JJAP.52.06GH01
9. H. Tohmyoh, Heat Conduction Model for Nanowire Applications, Applied Physics Letters, 査読有, Vol.102, 2013, 084107, 4 pages
DOI: 10.1063/1.4794146

10. 燈明泰成, 藤森將太, 渡邊彬仁, ジュール熱を用いて金属極細線を安定的に溶接する要件について, 第19回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム論文集, 査読有, Vol.19, 2013, pp.185-188
11. H. Tohmyoh, M.A.S. Akanda, Y. Nobe, Mechanical Properties of Thin Al Wires Prepared by Electromigration, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol.81, 2012, 094803, 4 pages
DOI: 10.1143/JPSJ.81.094803
12. H. Tohmyoh, S. Fukui, Manipulation and Joule Heat Welding of Ag Nanowires Prepared by Atomic Migration, Journal of Nanoparticle Research, 査読有, Vol.14, 2012, 1116, 9 pages
DOI: 10.1007/s11051-012-1116-x

[学会発表] (計27件)

1. 大門叡典, 燈明泰成, 薄板型熱発電機の発電原理とその高効率化について, 日本機械学会 東北学生会 第45回学生員卒業研究発表講演会, 2015年3月10日, 八戸工業高等専門学校 (八戸市).
2. 燈明泰成, 細線接触部のジュール熱溶融現象と破壊力学の関連について (依頼講演), 日本材料学会 微小材料強度学研究集会 実験編, 2014年12月26日, 日本材料学会会議室 (京都市).
3. H. Tohmyoh, Elastic and Plastic Properties of Metallic Microwires Modified with Joule Heat (Invited), International Conference on Small Science (ICSS 2014), 2014年12月8日, Eaton Hotel, Kowloon (Kowloon, Hong Kong).
4. 向峯翔太, 燈明泰成, 高分子フィルムを通過する超音波エコーの波形変化について (日本非破壊検査協会 新進賞 受賞), 日本非破壊検査 平成26年度秋季講演大会, 2014年10月29日, 名古屋国際会議場 (名古屋市).
5. H. Tohmyoh, A. Watanabe, Plate-Type Thermoelectric Power Generator having Nanoscale Bi-Metal Junctions, The 40th International Conference on Micro and Nano Engineering, 2014年9月25日, Swiss Tech Convention Center, EPFL (Lausanne, Switzerland).
6. 燈明泰成, 石原光晴, 電流を用いた金属細線の延性の回復に関して, 日本材料学会第63期通常総会・学術講演会, 2014年5月18日, 福岡大学 (福岡市).
7. 渡邊彬仁, 燈明泰成, 異種金属マイクロ細線接合部を有する熱電回路のゼーベック係数測定について, 日本機械学会第21回機械材料・材料加工技術講演会, 2013年11月9日, 首都大学東京 南大沢キャンパス (八王子市).
8. A. Watanabe, H. Tohmyoh, Fabrication of Thermoelectric Circuits by Welding Micro Metallic Wires with Joule Heat and Their Performance (優秀ポスター賞 受賞), International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, 2013年9月28日, 東北大学 川内北キャンパス (仙台市).
9. T. Sunagawa, H. Tohmyoh, Temperature Analysis of Dissimilar Metal Wires for Their Joule Heat Welding, International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, 2013年9月28日, 東北大学 川内北キャンパス (仙台市).
10. H. Tohmyoh, On the Joule Heat Cutting and Welding for Various Metallic Nanowires under Vacuum Environment, IVC-19 / ICN+T 2013 and partner conferences, 2013年9月12日, Palais des Congrès de Paris (Paris, France).
11. 藤森將太, 燈明泰成, 白金細線を対象としたジュール熱溶接の適用次元の拡張, 日本機械学会東北支部第48期総会・講演会, 2013年3月15日, 東北大学 (仙台市).
12. H. Tohmyoh, Joule Heat Welding of Metallic Nanowires for Creating New Functions (Invited), 2012 EMN Fall Meeting, 2012年12月2日, Red Rock Casino Resort and Spa (Las Vegas, Nevada, USA).
13. 燈明泰成, アカンダ M.A. サラム, 野辺佑樹, 坂真澄, 単結晶 Al マイクロ細線のヤング率と降伏応力について, 日本機械学会第20回機械材料・材料加工技術講演会, 2012年12月2日, 大阪工業大学 (大阪市).
14. 燈明泰成, 福井里留, 銀ナノワイヤの操作とジュール熱溶接条件について, 日本機械学会東北支部第48期秋季講演会, 2012年9月22日, 八戸工業高等専門学校 (八戸市).
15. H. Tohmyoh, A. Watanabe, Fabrication of Single-Crystalline Fe Nanowires from Oxidized Fe Plate, ThinFilms2012, 2012年7月16日, Singapore Management University (Singapore).

[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