

平成 27 年 4 月 30 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25810140

研究課題名(和文)印刷法を用いたストレッチャブル熱電変換素子の開発

研究課題名(英文)Development of stretchable and flexible thermoelectric conversion module by printing method

研究代表者

菅原 徹 (Sugahara, Tohru)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：20622038

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：研究/開発では、低温排熱を回収する為の実用に耐えうる熱電発電モジュールを開発することを最終的な目標とし、極薄フレキシブル基板上に多数の微細化した熱電素子を高密度で実装し、円筒状熱源に対して湾曲自在で密着性良く装着する従来にない高熱回収効率が可能なストレッチャブルでフレキシブルな熱電発電モジュールを開発した。

研究成果の概要(英文)：We have developed flexible TEG modules for applying to heat sources with the curved surface such as exhaust pipes using ICA packaging technology. The module concept is that a mass of small Bi-Te thermoelectric chips are tightly mounted on a thin film substrate and connected with flexible and stretchable ICAs by printing technique. Fabricated TEG modules with 250 p-n pairs of thermoelectric chips have been evaluated in detail.

研究分野：材料工学

キーワード：熱電発電 実装材料

### 1. 研究開始当初の背景

全一次エネルギーが最終消費エネルギーに転換される過程で 64%を超える莫大な熱が廃棄されており、その多くが 300 °C 以下の比較的低温廃熱と推定されている。これは 300 °C 以上の高温廃熱が、水蒸気による熱回収技術で既に実用化されているが、低温廃熱は熱エネルギーが低く使用できていない、つまりこれはエクセルギーが小さい事に起因する。現在、このような低温廃熱は、各種発電プラントや焼却炉、各種工場のボイラや高温炉等の廃熱、自動車廃熱等、地球上に莫大に存在する。このため、低温廃熱を、効果的に電気エネルギーに変換する実用的な熱電発電技術の開発が求められている。

### 2. 研究の目的

本研究・開発では、これらの低温廃熱を回収する為の実用に耐えうる熱電発電モジュールを開発することを最終的な目標としている。パイプ状の廃熱源に適合するフレキシブルな熱電モジュールの開発を最終目標としている。

熱電発電モジュールの実用化で必須の半導体高温接合形成技術が、現在の実用化耐熱レベルは約 150 °C 程度であり、最近、電力半導体や LED 用に、250 °C 耐熱高温接合形成技術が開発・実用化されている段階である。熱電発電においても、300 °C 以下の低温廃熱の効率的な回収には、250 °C の高温で、温度サイクルテスト等の過酷な信頼性試験にも耐え得る熱電発電モジュール用の高温接合形成技術の開発・実用化が必須である。本項では、まず 150 °C に対応するフレキシブル熱電発電モジュールの研究・開発について、現在までに得られている成果を報告する。

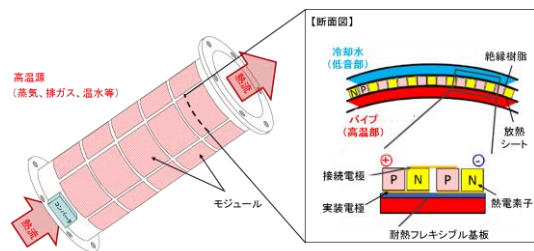


図 1. 熱源パイプに装着した熱電素子の模式図。

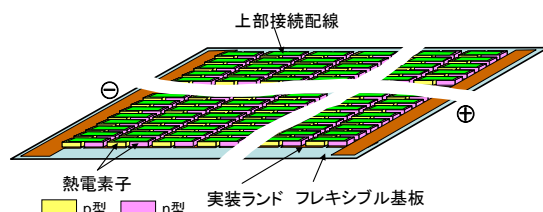


図 2. 熱源パイプに装着した熱電素子の模式図。

### 3. 研究の方法

図 1 は、フレキシブル熱電発電モジュールを排熱源パイプの湾曲面に装着し、廃熱回収システムとした時の模式図と、その素子モジュールの断面構造を示す。耐熱樹脂薄膜から成るフレキシブル基板の上に微小なバルクチップを高密度実装し、かつフレキシブルなチップ間配線を施した構成であり、多数のチップ間で基板が少しずつ変形湾曲することで、細いパイプに無理なく密着し、装着可能であることを示す。本研究開発では、半導体用高温接合技術とプリント実装技術を活用し、円筒状の排熱パイプから 150°C 程度の低温廃熱を効率的に熱回収できる熱電発電モジュールを開発する。

熱電発電において高いモジュール発電性能を得るためには、高性能な熱電変換材料が求められる。そのため、本研究では、250 °C 以下の温度範囲において最も性能の優れた BiTe 系熱電半導体を用いた。また、チップサイズは 1 mm 以下を想定し、チップ高さも低減することを基本構想としている。図 2 に、本研究・開発で実現する熱電モジュール構造の模式図を示す。極薄フレキシブル基板の上に、図 2 で示すような回路構造で、多数の微細化した熱電半導体材料を高密度に実装した。

### 4. 研究成果

図 3 にモジュール作製手順を示す。フレキシブル基板に、それぞれの工程で、各種半導体実装技術[(1)スパッタ蒸着、電解・無電解めっき、エッチング、(2)ソルダリング、マウンティング]と各種印刷法[(3)ディスペンシング、(4)スクリーン or マスク印刷]を、前述の回路に示したように、活用し一軸方向に湾曲可能な、熱電発電モジュールを開発することに成功した。

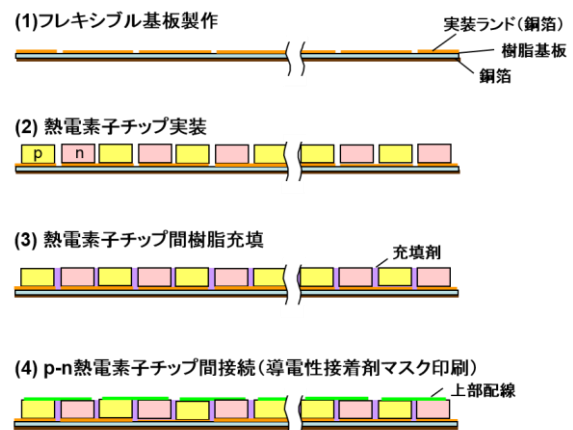


図 3. フレキシブル熱電モジュールの作製手順。

図 4 は、完成したモジュールの概観写真を示す。先行研究において、フレキシブル熱電発電モジュールの可能性を検証するために、6 pn 対および 32 pn 対の BiTe 系チップをフレキシブル基板に実装した簡易モジュールを試作し評価している。

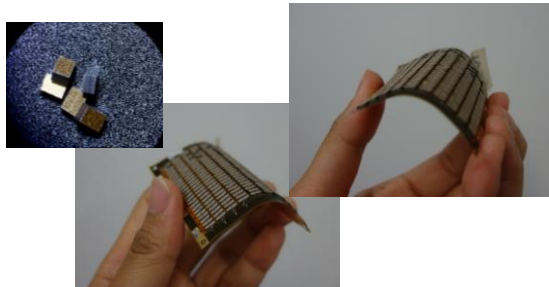


図 4. 切断された微小熱電半導体チップと本研究で作製した 250pn 対熱電モジュールの概観写真。

先行研究において、フレキシブル熱電発電モジュールの可能性を検証するために、6 pn 対および 32 pn 対の BiTe 系チップをフレキシブル基板に実装した簡易モジュールを試作し評価している。図 5 は 32 対のモジュールの曲げ状態の写真である。このモジュールは、BiTe 系熱電素子で期待される良好な電圧が得られた。また、 $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$  と  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$  との間で 100 回の冷熱サイクル試験を行ったが、図のように曲げ状態でも特性に変化は観察されなかった。



図 5. 先行研究において作製された 32 対熱電モジュールの湾曲状態。

### 同心円筒モデル

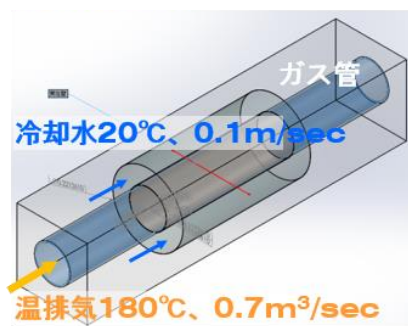


図 6. 本研究で採用した熱効率シミュレーションモデル。

本研究では、実際の廃熱配管から得られる熱回収効率を熱流体解析によって数値解析した。図 6 は、本研究で熱回収効率を検討した解析モデルを示している。ここで、廃熱配管を通過する排気ガスの温度は  $180\text{ }^{\circ}\text{C}$  とし、その流速は  $0.7\text{ m}^3/\text{s}$  を想定した。また、外部の冷却水は  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$  で、流速は  $0.1\text{ m}^3/\text{s}$  とした。

図 7 は、上記計算モデルの計算メッシュを示す。挿入図で示されているように、配管の厚み付近は、温度勾配が著しく変化することが予想されるため、計算要素を微細に分け、

詳細に計算した。

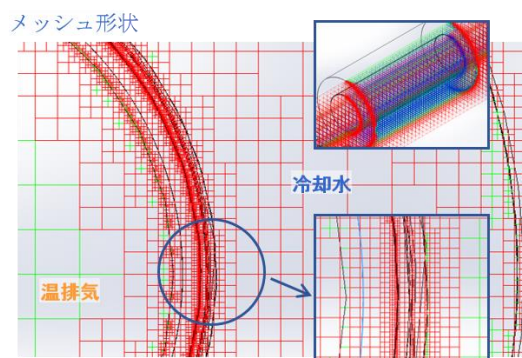


図 7. 配管付近の計算メッシュ。挿入図は計算系全体と熱電モジュール付近の計算メッシュの拡大を示す。

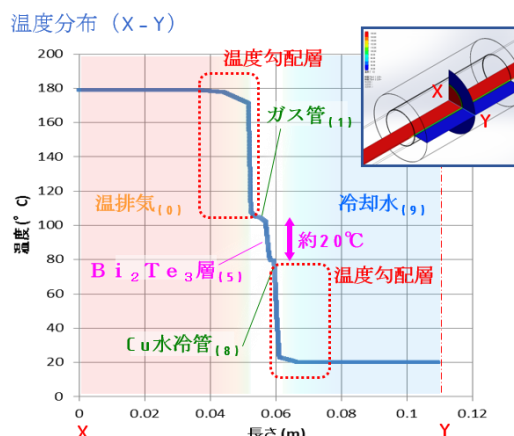


図 8. フローシミュレーションによって求めた熱電モジュール付近の温度分布。

図 8 は、熱流体解析によるシミュレーションから求めた廃熱配管の中心から外側への温度分布を示している。図から分かるように、熱電モジュールより配管の内外で、急激な温度勾配が観察される。しかしながら、本検討でモジュールに掛かる温度差は  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$  程度であり、実際のモジュールに掛かる温度差とは、若干の違いが生じている。これは、配管とモジュールに掛かる熱抵抗と熱コンタクトの見積もりに現実と差異があることが原因と考えられる。

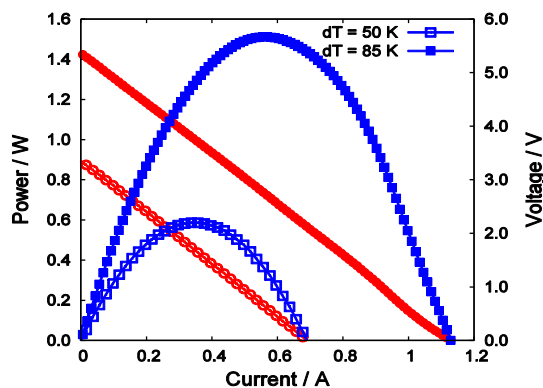


図 6. 本研究で開発した 250 対熱電モジュールの開放端電圧と出力。平均温度  $120\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、温度差  $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。

図9は、本研究で試作した250 pn 対の熱電モジュールにおける、平均温度が約70 °Cと120 °C 時に電流を走査しながら測定した開放端電圧とその測定値から見積もった出力曲線を示す。図6から分かるように、最大の電圧はそれぞれ、約1.4 V, 0.5 Vであり、電流値0.6 A, 0.35 Aの時、最大出力は1.5 W, 0.6 Wを示した。なお、これらから見積もった、出力密度は約0.06 W/cm<sup>2</sup>に留まっているが、使用している熱電変換材料の特性を考慮すると、電極や接触抵抗値を加味した電気損失率は40-60%程度であり、現在、報告されている高変換効率の熱電変換モジュールに匹敵する実装潜在能力を示している。

## 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2件)

1. Tohru Sugahara, Yukiko Hirose, Shuren Cong, Hirotaka Koga, Jinting Jiu, Masaya Nogi, Shijo Nagao, Katsuaki Suganuma, “Sol-gel-derived High-performance Stacked Transparent Conductive Oxide Thin Films”, J. Am. Ceram. Soc. 97, 10, 3238–3243 (2014).
2. Teppi Araki, Tohru Sugahara, Jintng Jiu, Sshijo Nagao, Masaya Nogi, Hirotaka Koga, Hiroshi Uchida, Kenji Shinozaki, Katusaki Suganuma, “Cu Salt Ink Formulation for Printed Electronics using Photonic Sintering, Langmuir, 29, 11192–11197 (2013).

[学会発表] (計9件)

1. 菅原 徹、松尾 琢朗、廣瀬 由紀子、酒金 婷、長尾 至成、菅沼 克昭、  
「ゾル・ゲル由来のアモルファス IGZO-TFT の創製とその特性」  
日本セラミックス協会 2015 年年会、2015 年 3 月 18 日–20 日、岡山大学、岡山
2. Shuren Cong, Tohru Sugahara, Jinting Jiu, Yukiko Hirose, Shijo Nagao, and Katsuaki Suganuma  
“Synthesis of molybdenum trioxide nanorods arrays via one-step sol-gel spin coating method”  
日本セラミックス協会 2015 年年会 (The Ceramic Society of Japan Annual Meeting 2015 ), March 18-20, 2015, Okayama University, Japan
3. Tohru Sugahara, Takuro Matsuo, Yukiko Hirose, Jinting Jiu, Shijo Nagao, and Katsuaki Suganuma  
“Sol-Gel-Derived Amorphous Semiconductor TFT Fabrication and its Performance”  
EMN Ceramics Meeting 2015, 2015/01/26– 29, Orlando, FL USA
4. 菅原 徹、廣瀬 由紀子、大畑 恵一、南部 修太郎、清水 裕一、菅沼 克昭、  
「曲面排熱源に適應するフレキシブル熱電

発電モジュールの開発」

第 11 回日本熱電学会学術講演会、2014 年 10 月 29-30 日、つくば、茨城

5. Shuren Cong, Tohru Sugahara, Jinting Jiu, Yukiko Hirose, Shijo Nagao, and Katsuaki Suganuma

“Growth and characterization of molybdenum oxide nanorods by one-step sol-gel spin coating method”

第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 17 日~20 日、北海道大学、札幌

6. T. Matsuo, T. Sugahara, Y. Hirose, J. Jiu, S. Nagao, K. Suganuma, Jianying He, Zhiliang Zhang

“Photoelectrical and microphysical properties of Sol-Gel derived IGZO thin films for printed TFTs”

ESTC 2014, Helsinki, Finland, September 16 – 18, 2014

7. 松尾琢朗・菅原徹・廣瀬由紀子・酒金婷・長尾至成・菅沼克昭

「ゾル・ゲル法による IGZO 均一膜の作製と安定剤の効果」

日本セラミックス協会、第 27 回秋季シンポジウム、2014 年 9 月 9 日 (火) ~11 日 (木) 鹿児島大学、鹿児島

8. T. Sugahara, Y. Hirose, H. Koga, J. Jiu, M. Nogi, S. Nagao, and K. Suganuma, “Physical Properties and Deposited Condition of Sol-Gel Derived Metal Oxide for Transparent Conductive Film”

EMN Summer and Energy Materials Nanotechnology, 9–12, June 2014, Cancun, Mexico

9. 菅原 徹、廣瀬 由紀子、松尾 琢朗、長尾 至成、酒 金 婷、菅沼 克昭

「ゾル・ゲル法を用いた金属酸化物薄膜の作製と物性評価」

日本セラミックス協会 2014 年年会、2014 年 3 月 17 日-19 日、慶應義塾大学、東京

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等  
なし。

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

菅原徹(大阪大学)

研究者番号：14401-857-28-20622038