

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 31 日現在

機関番号：82626

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14169

研究課題名（和文）異種金属直接接合技術を利用した積層型熱電発電モジュールの創製

研究課題名（英文）Creation of laminated pi-type thermoelectric power generation module using dissimilar metal direct bonding technology

研究代表者

佐藤 宏司 (Sato, Hiroshi)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・製造技術研究部門・主任研究員

研究者番号：70344166

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：熱電発電デバイスは、材料に異なる2つの温度を加えたときに生じる温度差により電圧を発生するゼーベック効果を利用したエネルギー変換デバイスである。極性の異なるP型熱電素子とN型熱電素子を温度差方向に対して垂直に交互に並べて、上下互い違いに電極に接合することにより（型構造）、電力を得ることができる。しかしN型やP型に利用される材料は高価であり、型構造は複雑なため量産性は悪く、銀ペーストを用いて直列に素子を接合していくため内部抵抗が上がり効率が悪くなる問題があった。このような問題に対して、我々は低価格なニッケル板とアルミニウム板を直接接合した積層型熱電デバイスを提案した。

研究成果の概要（英文）：In this study, we propose a new stacked -type structure sandwiched between an insulating layer using a metal direct bonding technology. By using this technique, significantly lowered layered structure the electrical resistance of the joint portion, because it can be produced by laminating at least one hundred sheets at a time, even when using a metal material having low Seebeck effect, a sufficiently practical level. And by utilizing the anodic oxide film formed on the aluminum surface as an insulating layer, to prepare an accordion structure device adhered by the bonding portion of the -type structure. With such a structure, increasing the cooling performance, the structure itself can correspond to the shape of the heat source has a flexibility.

研究分野：機械工学

キーワード：熱電発電 ゼーベック効果 直接接合 ニッケル アルミニウム アコーディオン構造

1. 研究開始当初の背景

熱電発電デバイスは、材料に異なる2つの温度を加えたときに生じる温度差により電圧を発生するゼーベック効果を利用したエネルギー変換デバイスである。一般にはゼーベック効果の高いビスマス系材料に添加物を入れ、発生する電圧の極性の異なるP型熱電素子とN型熱電素子を利用する。温度差方向に対して、垂直にN型素子とP型素子を交互に並べて、上下互い違いに電極に接合することにより(型構造)電力を得ることができる。ゼーベック効果による発電能力は、現在広く利用されているビスマステルル系化合物でも高々 $200\mu\text{V/K}$ 程度であるため、型構造を百個程度直列に結合し、電圧を実用可能なレベルにまで昇圧する必要がある。しかし型構造は複雑であり量産性は悪く、銀ペーストを用いて直列に素子を接合していくため内部抵抗が上がり効率が悪くなる問題があった。そのためゼーベック定数が高いレアメタル材料であるビスマステルル系化合物を利用しなければ実用的な電力を得ることができなかった。

2. 研究の目的

近年、エネルギーの地産地消技術としてエナジーハーベストに関する研究が盛んに行われている。中でも我々の身の回りで捨てられている低温排熱を利用し電気を発電することのできる熱電発電技術はきわめて有効な技術であるが、用いられる材料はレアメタル系材料が多く高額で、構造もn型素子とP型素子による構造を作製する必要があり、価格、量産性の面で問題があった。

このような問題を解決するために、我々は異種金属直接接合技術を応用し、低価格なニッケルとアルミニウムの接合界面の一部に絶縁層を作製した積層型構造の試作に成功した。本研究ではこの技術を発展させ、熱電発電デバイスの問題であったコストを下げ、複雑な型構造を量産性の高め、構造部材としても利用できる積層型熱電熱電発電デバイスの開発を目指す。

3. 研究の方法

本研究では研究期間を2年間とし、産業技術総合研究所と千葉大学の2つの機関で協力し、それぞれ連携しながら独自の得意分野を生かした課題について研究を進める。産業技術総合研究所では、デバイス試作評価として、すでに作製に成功しているニッケル・アルミニウム・ボロンナイトライド積層構造を利用した積層型熱電デバイスの構造解析、試作、評価を行い本デバイスが熱電デバイスとして有効であることを示す。千葉大学では積層構造を作るために接合条件の最適化を進める。また構造部材として十分な強度を得るために、より密着性の高い絶縁膜の探索を行う。さらに余裕があればニッケル・アルミニウム以外の金属で積層型構

造が作製可能かどうか探索する。

27年度はすでに作成に成功しているボロンナイトライドを利用した積層構造の評価、解析を進め積層型熱電発電デバイス試作のための各種基礎特性の評価を進める。

(1)ニッケル・アルミニウム・ボロンナイトライド積層構造の評価(産業技術総合研究所)

ニッケル・アルミニウム直接結合部に生成される共晶反応層の厚みと電気抵抗と剥離強度との関係を調べ、最適な共晶反応層の厚みの解析し、接合条件へフィードバックする。またニッケル・ボロンナイトライド層、アルミニウム・ボロンナイトライド層の剥離強度と絶縁特性を調べ、積層型構造を形成するのに必要な絶縁膜の厚みを導き出す。さらにニッケル・アルミニウム・ボロンナイトライド積層構造に温度差を加え、発生する起電力の評価を行い、発電が可能であることを示す。また得られた各種パラメーターを有限要素法解析へフィードバックし、解析精度の向上を目指す。

(2)積層型熱電デバイスの設計(産業技術総合研究所)

有限要素法ソフトANSYSを用い積層型構造の熱電解析、構造解析を行い、本構造が熱電発電デバイスとして有効に機能していることを示す。また積層構造の各種パラメーターを変化させ、ニッケル、アルミニウム、ボロンナイトライドの最適な厚み、構造を求め、積層型熱電熱電デバイスの具体的な設計を行う。

(3)最適な接合条件の探索(千葉大学)

構造部材としての十分な強度を持ち、なおかつ電気抵抗率を下げた共晶反応層の厚みにするための接合条件(反応時間、温度、加える圧力の値)を求め、熱電発電デバイスに特化した直接接合条件を見つける。

(4)絶縁層の探索(千葉大学)

すでにボロンナイトライドを用いた絶縁層被膜の作製には成功しているが、ボロンナイトライドは一般に剥離剤に利用されるように、接合強度自体は弱い。構造部材として強度を高めるために、金属材料と接合強度の高い絶縁被膜材料の探索を行う。

(5)関連特許の出願準備(産業技術総合研究所、千葉大学)

積層型熱電発電デバイスの構造特許、およびニッケル・アルミニウム・ボロンナイトライドによる積層構造のプロセス特許の出願準備を行うと共に、出願のための必要な実験、評価を進める。

平成28年度は27年度に行った研究を元に、積層型熱電発電デバイスの試作・評価をおこない積層型構造の優位点を示すとともに、他の金属材料、絶縁材料を用いた積層構造の作製についても研究を進め、より高効率化への展開を模索する。

(1) ニッケル・アルミニウム・ボロンナイトライド積層型構熱電発電デバイスの試作、およびその評価(産業技術総合研究所)前年度に設計を行った積層型構熱電発電デバイスを試作し、熱電発電デバイスとしての評価を行い、本デバイスが熱電発電デバイスとして有効に機能していることを示す。また機械的特性を評価し、本デバイスが構造部材としても利用可能であることを示す。

(2) 他の金属結合の探索(千葉大学)

ニッケル・アルミニウム接合のほかに、ニッケルと銅でも直接接合が可能であることがすでに分かっている。他の金属素材においても同じように絶縁層を挟んだ積層構造の作製が可能であるか探索を続け、他の金属材料への展開を目指す。

(3) 関連特許の出願準備(産業技術総合研究所、千葉大学)

これまでの実験データをまとめ、積層型熱電発電デバイスの有効性を示した構造特許、およびニッケル・アルミニウム・ボロンナイトライド積層構造の最適作製条件を示したプロセス特許、他の金属材料への展開も含め実用性のある強い特許の出願を行う。

4. 研究成果

アルミニウム基板の一部に1μmの陽極酸化膜を製膜し、ニッケル基板を接合させた構造による発電試験に成功した(図1)。

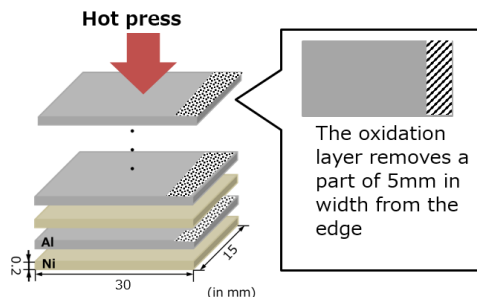


図1 ニッケルとアルミニウムの直接接合

このようにして作製したデバイスは図2のような積層構造になる。図3、図4、図5にホットプレス機を用いて22MPa, 600、40分の条件で作製したニッケル・アルミニウム・陽極酸化膜複合材料のSEMによる断面写真(図2の(1),(2),(3)の箇所)を示す。

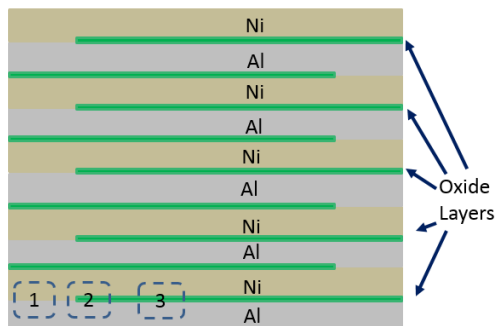


図2 陽極酸化膜による型積層構造

直接接合しているアルミニウムとニッケル部分には約20μmのニッケル・アルミニウム共晶が生成されているが(図3)電気抵抗率は $2.35 \times 10^{-7} \cdot m$ と極めて低い値であったことが低抵抗測定により解った。また陽極酸化膜を挟む積層構造部分では、陽極酸化膜は絶縁層としてだけでなく、ニッケルとの剥離材として、機能していることが解った(図4,図5)。

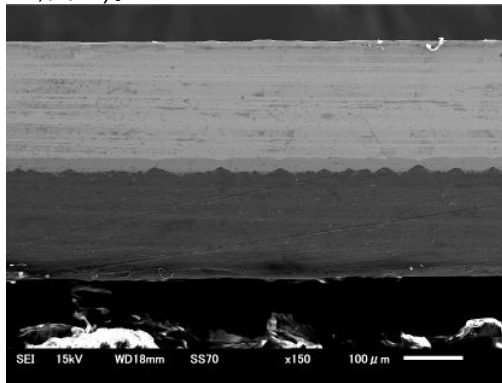


図3 ニッケル・アルミニウム・陽極酸化膜複合材料(a)Ni・Al積層部分

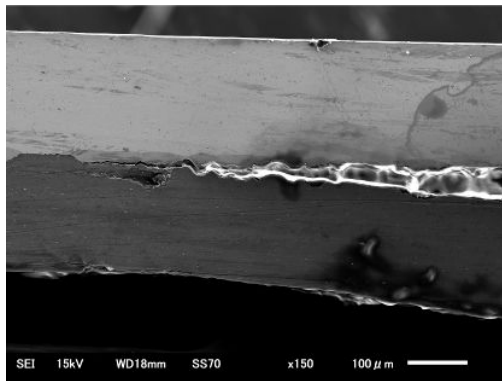


図4 ニッケル・アルミニウム・陽極酸化膜複合材料 (b)陽極酸化膜が半分入った部分

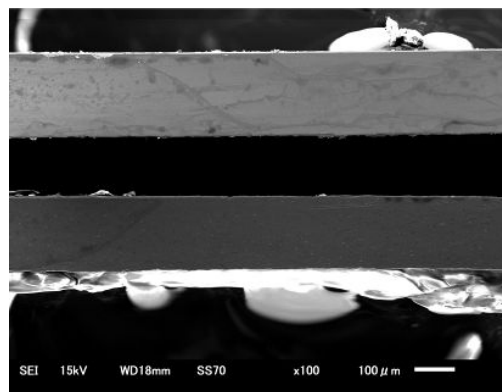


図5 ニッケル・アルミニウム・陽極酸化膜複合材料(c)陽極酸化膜により剥離した部分

陽極酸化膜部分を剥離させ、デバイスを左右に広げると、ニッケルとアルミニウムが直接接合している部分だけで繋がった図6に

示すような構造の熱電デバイスになる。試作した 10 層の蛇腹構造熱電発電デバイスに 130 の温度差を加えることにより、最大 300 μ W 以上の発電に成功している (図 7)。このように従来の構造のように後工程として P 型熱電素子と N 型熱電素子を銀ペーストで繋ぎ合わせるのではなく、異種金属直接接合法を用いて、ニッケルとアルミニウムを直接接合し、またアルミニウム表面に作製した陽極酸化膜を剥離材として利用することにより、放熱性特性に優れ、構造自体が柔軟性を持つ蛇腹構造熱電発電デバイスが簡単に作製可能である。



図 6. 蛇腹構造熱電デバイス

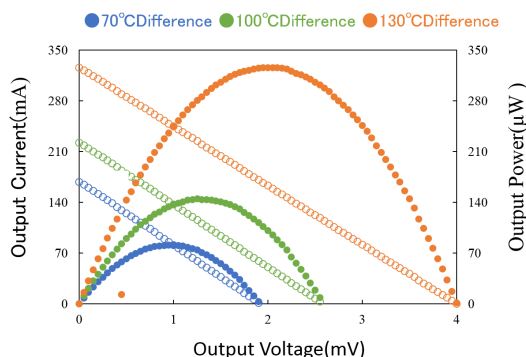


図 7. 試作した蛇腹構造による発電結果

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 0 件)

〔学会発表〕(計 3 件)

1) A study on the multilayer -type thermoelectric power generation module using the metal direct bonding technology, Hiroshi Sato, So Baba, Teturo Yanaseko, Hiroshi Asanuma, Proceedings of SPIE Smart Structures/NDE 2016 (the JW Marriott Las Vegas Resort and Spa, Las Vegas, Nevada, USA)

2) 異種金属直接接合技術を利用したアコーディオン型熱電発電モジュールに関する研究, 佐藤宏司, 馬場 創, 柳迫徹郎, 平山祐

輝, 浅沼 博, 2016 年日本機械学会年次大会 (九州大学、福岡)

3) 異種金属直接接合技術を利用した積層型熱電発電モジュールに関する研究, 佐藤宏司, 柳迫徹郎, 平山祐輝, 浅沼博, 2015 年日本機械学会年次大会 (北海道大学、札幌)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称: 熱電発電デバイス及びその製造方法、
発明者: 佐藤宏司、馬場創、浅沼博、柳迫徹郎

権利者: 産総研、千葉大学

種類: 特願

番号: 2016-175540

出願年月日: 2016 年 9 月 7 日

国内外の別: 国内

取得状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者 佐藤宏司 (Sato, Hiroshi) (国立研究開発法人産業技術総合研究所・製造技術研究部門・主任研究員)

研究者番号: 70344166

(2) 研究分担者 浅沼博 (Asanuma, Hiroshi) (国立大学法人千葉大学大学院 工学部教授)

研究者番号: 40167888

(2) 研究分担者 柳迫徹郎 (Yanaseko, Tetsuro) (工学院大学 工学部 機械工学科 助教)

研究者番号: 80784628