

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 7 月 6 日現在

機関番号：33910

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2019

課題番号：16K14550

研究課題名（和文）超伝導直流送電用の極低温対応型ペルチェ素子の接合技術研究開発

研究課題名（英文）Room temperature bonding of aluminum and Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> for Superconducting DC Power Transmission System

研究代表者

井上 徳之（INOUE, Noriyuki）

中部大学・超伝導・持続可能エネルギー研究センター・教授

研究者番号：20249965

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、社会実装段階を迎える「超伝導直流送電システム」に使用する「ペルチェ電流リード」の性能向上のため、極低温で剥離しない異種材料接合の実現を目指している。ペルチェ素子とアルミニウムなどの配線の常温直接接合の例はこれまでにはなく、性能の飛躍的向上が期待される。研究成果として、ピスマステルルとアルミニウムを「常温接合」により接合できることが確認できた。実現にはナノレベルの表面研磨を含む接合条件が必要で、AFM、XPS、SEM、TEMなどの分析をもとに最適化を図った。今後、この接合条件をもとに、機械的試験、電気的試験が可能なサイズに拡大して、ペルチェ電流リードの性能向上に寄与する計画である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、ペルチェ素子（ピスマステルル）と配線素材（アルミニウム）が「常温接合」により接合できることを確認したことである。接合にはナノレベルの表面研磨を含む接合条件が必要で、AFM、XPS、SEM、TEMなどの分析をもとに接合条件の最適化を図った。ペルチェ素子とアルミニウムなどの配線の常温直接接合の例はこれまでにはなく、性能の飛躍的向上が期待される。超伝導直流送電システムは、実証実験の成功から社会実装段階を迎えており、本研究による「ペルチェ電流リード」の性能向上による、超伝導直流送電システムの社会実装に寄与することが期待される。

研究成果の概要（英文）：A room temperature bonding of Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>, one of the Peltier elements, and Al of a wiring material was carried out using by a surface activated bonding method (SAB). The surface of samples was mirror-polished. Before contact, oxide layers on Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> and Al were removed by irradiation of a fast atom beam for 1 min and 7 min, respectively. The bonded interface was observed by Transmission Electron Microscope. There was two layers at the interface of Al/Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>, one is a layer containing Te, and another containing O and Al. We have successfully demonstrated the room temperature bonding of the Peltier elements and wiring materials. A current technology, soldering, forms an intermetallic compounds at the interface. The SAB is possible to form the interface without a thick intermetallic compound layer. It indicate the potential to significantly improve the insulation properties and electrical characteristics of the Peltier current leads for superconducting DC power transmission system.

研究分野：精密工学、材料科学、超伝導工学、核融合炉工学、科学コミュニケーション

キーワード：超伝導直流送電 ペルチェ素子 電流リード 常温接合 ピスマステルル 電気特性 機械的強度 イ  
オンバッテリー

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 再生エネルギーを飛躍的に拡大する技術に「超伝導直流送電」がある。従来の交流送電に比べて、変圧や直交変換、電気抵抗による損失を減少し、送電損失を **1/40** にする試算もあり、次世代の送電システムとして期待されている。超伝導直流送電は実証実験の段階を迎えたが、超伝導現象の発現のためにケーブルを極低温(液体窒素温度：**77K**)まで冷却・保持する必要がある、超伝導送電システムへの熱侵入低減が実用化のための最重要課題となっている。

(2) 超伝導送電の端末部には、電気を取り出すために低温環境と室温環境を貫く「電流リード」があり、この部分が熱侵入経路として問題になっている。電流リードで使用する電気抵抗の小さい良導体(通常金属)は、熱の良導体でもあり大きな熱の侵入経路となる。そこで、中部大学では、ペルチェ効果(熱を1方向に輸送する効果)を利用し、積極的に熱エネルギーを外部へ汲み出す機能を備えたペルチェ電流リードを開発し、これにより熱侵入の低減に大きな効果を見出した。

(3) しかしながら、このペルチェ素子のハンダ接合部分で剥離がみられ、電気抵抗値が上昇する問題が見つかった。その後、熱収縮による剥離を回避するため、ペルチェ素子を小さく分割した状態で界面を挟む方法が提案されて破壊強度の向上が見られたが、長期的な使用ではハンダの低温劣化による割れ現象(はんだペスト現象)は回避できないため、現状では機械的に接触させて使用されているが界面の電気抵抗に課題があるため、これを解決できる接合技術が求められている。

## 2. 研究の目的

本研究は、超伝導送電ケーブルに使用する「ペルチェ電流リード」の性能向上のため、極低温で剥離しない異種材料接合の実現を目指している。ペルチェ素子とアルミニウムなどの配線の常温直接接合の例はこれまでにはなく、性能の飛躍的向上が期待される。実現のためにはナノレベルの表面研磨を含む接合条件の最適化が必要である。また、接合時の残留応力と界面の電気抵抗を同時に低減することを目的として、表面活性化による常温接合法による直接接合の接合条件の最適化を実現する。

## 3. 研究の方法

(1) ペルチェ素子とアルミニウムの接合材料として、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  (N型)と $\text{Bi}_{0.3}\text{Sb}_{1.7}\text{Te}_3$  (P型)と高純度多結晶アルミニウム(99.999%)を用いた。アルミニウムは直径3mmで長さ5mmの接続部と直径10mm長さ10mmの保持部分に切り出し、接触面を曲率半径25mmに加工し接合材料とした。 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ と $\text{Bi}_{0.3}\text{Sb}_{1.7}\text{Te}_3$ は6mm×6mm×6mmのサイズに加工し接合用材料として用いた。

(2) アルミニウムは、鏡面加工処理を施す目的で、研磨紙による機械研磨、アルミナ砥粒(粒径5 $\mu\text{m}$ , 1 $\mu\text{m}$ )を用いたバフ研磨を行なった。各工程においてアセトンとエタノールで超音波洗浄を行なった。最終研磨として過塩素酸(30%)とエタノール(70%)を用いた化学研磨を273Kで行った。研磨後は、研磨歪みを除去するため真空加熱炉を用いて393Kで2

時間アニーリングを行った。 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ と $\text{Bi}_{0.3}\text{Sb}_{1.7}\text{Te}_3$ の鏡面加工処理は、研磨紙による機械研磨、ダイヤモンド砥粒（ $3\mu\text{m}$ ,  $1\mu\text{m}$ ）を用いた研磨後、マスタープレップで最終研磨を行なった。各工程において水洗いを行なった。研磨後の表面粗さの状態は、原子間力顕微鏡エス・アイ・アイ製AFM L-traceで評価した。

(3) 接合前の材料表面は、高速原子線照射（加速電圧 $1.0\text{kV}$ 、電流値 $20\text{mA}$ ）をアルミニウム側に7分間、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ と $\text{Bi}_{0.3}\text{Sb}_{1.7}\text{Te}_3$ 側に1分から10分間照射し、照射時間の最適化を行なった。照射の効果については、X線光電子分光（ULVAC-PHI ESCA1600）で表面分析を行い評価した。

(4) 常温接合は、荷重 $14\text{kgf}$ で1分間接触させて行なった。接合界面は透過電子顕微鏡（JEM-2100F）を用いて観察を行った。

#### 4. 研究成果

本研究の成果は、常温接合により $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ とアルミニウムの常温接合ができたことで、接合界面の観察において $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ とアルミニウムの界面が密着している様子を確認した。この表面活性化による常温接合法において、直接接合の接合条件を最適化した。

(1) 図1に $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ と $\text{Bi}_{0.3}\text{Sb}_{1.7}\text{Te}_3$ の研磨後の表面計測結果を示す。市販の鏡面研磨の表面では突起状の形状が多くみられたが（図1-a）、研磨の最適化を行うことでナノレベルでの平坦性が得られた（図1-b）。

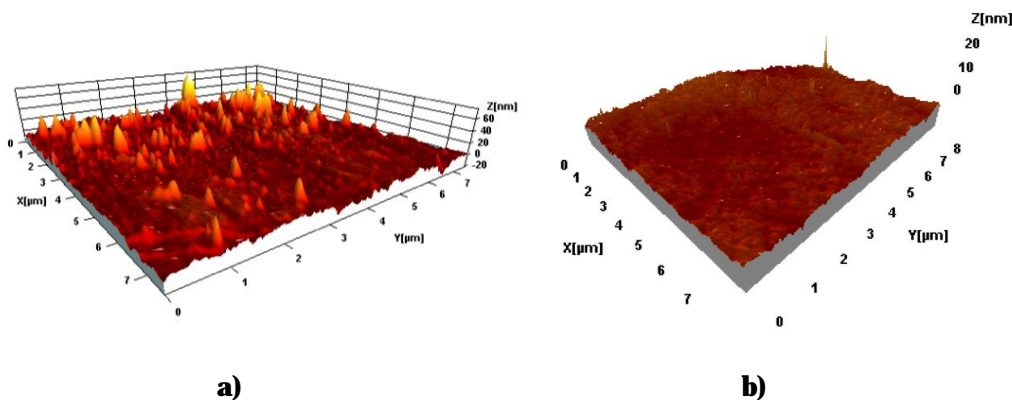


図1 原子間顕微鏡による $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 表面の観察。a)は市販の研磨表面、b)は研磨方法の最適化後の表面。

(2) アルゴン高速原子線照射による $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の表面の状態をXPS分析した結果を図2に示した。照射前に見られた酸素と炭素のピークは照射1分後には見られなくなった。 $\text{Bi}_{0.3}\text{Sb}_{1.7}\text{Te}_3$ の表面も同様の結果が見られた。照射時間は1分で十分であることが分かった。

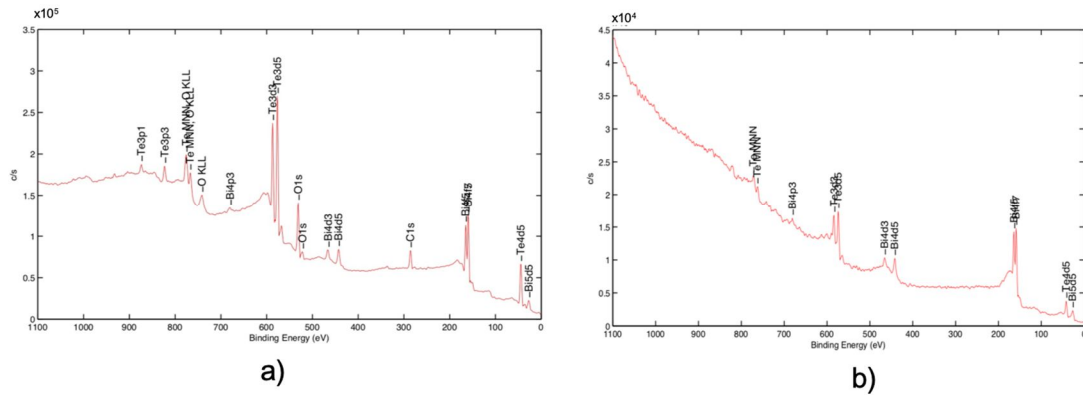


図2 XPSによる $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の表面分析結果。(a)アルゴン高速原子線照射前、(b)1分間照射後

(3) 透過電子顕微鏡による接合界面の観察ではアルミニウムと $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 界面が密着している様子が見られた(図3-a)。界面には2種の界面層がある(図3-b)。1層はアルミニウム側にあり、厚さは約1 nmの結晶構造でTeが含まれている。2層目は $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 側にあり、厚さは約7 nmのアモルファスとナノ結晶粒があり、組成は主にアルミニウムである。今回のような独特な界面形成のメカニズムは興味深く、解明については今後の課題である。

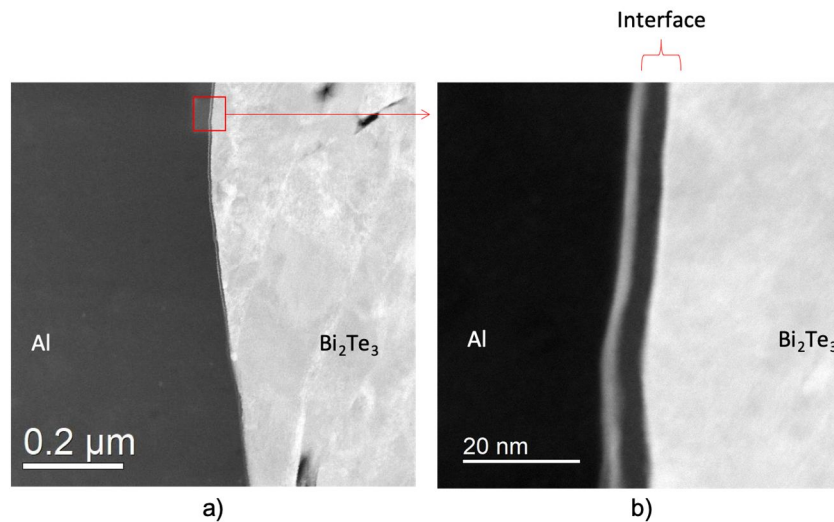


図3 接合界面の電子顕微鏡像(a)、(b)は(a)の部分の拡大図。界面に2層あることがわかる。

(4) 以上の結果より、ビスマステルルとアルミニウムは「常温接合」により接合できることが確認できた。今後は、本研究で「常温接合」に成功したビスマステルルとアルミニウムの接合条件をもとに、機械的試験、電気的試験が可能なサイズに拡大して、超伝導直流送電に用いる「ペルチェ電流リード」の性能向上に寄与する計画である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 Ivanov Yury V., Watanabe Hirofumi, Chikumoto Noriko, Takano Hirohisa, Inoue Noriyuki, Kanda Masae, Vyatkin Vladimir S., Yamaguchi Satarou, Ishiyama Kotaro, Watanabe Michihiko, Sawamura Toru	4. 巻 28
2. 論文標題 Effective Vacuum Pumping of a Long HTS Power Transmission Line Insulated With Heat Radiation Shield	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TASC.2018.2818755	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 -

1. 著者名 Ivanov Yury, Yamauchi Kengo, Vyatkin Vladimir, Watanabe Hirofumi, Inoue Noriyuki, Chikumoto Noriko, Yamaguchi Satarou	4. 巻 5
2. 論文標題 Advantages of water-cooled Peltier current leads for HTS devices	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materials Today: Proceedings	6. 最初と最後の頁 10408~10412
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.matpr.2017.12.289	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17件（うち招待講演 2件/うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Y. Ivanov, H.Watanabe, N. Chikumoto, N.Inoue, H. Takano, M. Kanda, and S. Yamaguchi
2. 発表標題 A proposal of hybrid energy transfer pipe
3. 学会等名 Oth Asian-ACASC/2nd Asian-ICMC/CSSJ Joint Conference (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口作太郎, 神田昌枝, イワノフ・ユーリ, 渡邊裕文, 筑本知子, 井上徳之, 高野廣久
2. 発表標題 石狩超電導直流ケーブルの断熱性能解析-4 最適なMLI構成を目指して
3. 学会等名 第98回 低温工学・超電導学会研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 イワノフ・ユーリ, 渡邊裕文, 筑本知子, 神田昌枝, 井上徳之, 高野廣久, 山口作太郎
2. 発表標題 HTS DC送電システムの端末クライオスタットの最適化について
3. 学会等名 第98回 低温工学・超電導学会研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 IVANOV Yury, 渡邊 裕文, 筑本 知子, 神田 昌枝, 井上 徳之, 高野 廣久, 山口 作太郎
2. 発表標題 LNGと電力を送るハイブリッド管の設計
3. 学会等名 低温工学・超電導学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口 作太郎, 神田 昌枝, IVANOV Yury, 渡辺 裕文, 筑本 知子, 井上 徳之, 高野 廣久
2. 発表標題 石狩超電導直流ケーブルの断熱性能解析-2
3. 学会等名 低温工学・超電導学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 渡邊 裕文, 三宅 克弥, 神田 昌枝, イワノフ ユーリ, 筑本 知子, 井上 徳之, 高野 廣久, 山口 作太郎
2. 発表標題 超伝導送電用真空断熱配管の熱侵入量の外管温度依存性
3. 学会等名 低温工学・超電導学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Ivanov, Y. Shii, H. Watanabe, N. Chikumoto, H. Takano, N. Inoue, M.Kanda, S. Yamaguchi
2. 発表標題 Dependence of the heat leak of the Peltier current lead on design of its copper part
3. 学会等名 XVI INTERSTATE CONFERENCE THERMOELECTRICS AND THEIR APPLICATIONS (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口 作太郎, 神田 昌枝, イワノフ ユーリ, 渡邊 裕文, 筑本 知子, 井上 徳之, 高野 廣久
2. 発表標題 石狩超電導直流ケーブルの断熱性能解析-3
3. 学会等名 低温工学・超電導学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 1. 山口 作太郎、渡邊 裕文、イワノフ ユーリ、筑本 知子、神田 昌枝、井上 徳之、高野 廣久
2. 発表標題 石狩超電導直流ケーブルの断熱性能解析-1
3. 学会等名 2017年度秋季(第95回)低温工学・超電導学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 4. イワノフ ユーリ、渡邊 裕文、筑本 知子、高野 廣久、神田 昌枝、井上 徳之、山口 作太郎
2. 発表標題 石狩超電導直流ケーブルのベルチェ電流リードの熱侵入量見積り
3. 学会等名 2017年度秋季(第95回)低温工学・超電導学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山口 作太郎, 渡邊 裕文, IVANOV Yury, 筑本 知子, 神田 昌枝, 井上 徳之, 高野 廣久
2. 発表標題 石狩プロジェクトでの断熱2重管での輻射と熱伝導による熱侵入の分離
3. 学会等名 2017年度春季(第94回)低温工学・超電導学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 N. Chikumoto, H. Watanabe, Y.V. Ivanov, H. Takano, N. Inoue, S. Yamaguchi, K. Ishiyama, Z. Oishi, M. Watanabe, and T. Masuda
2. 発表標題 Construction and operation test of a 1km-length Superconducting DC power transmission system
3. 学会等名 IUMRS-ICAM2017(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 N. Inoue, M. Kanda, Y. Nishi
2. 発表標題 Surface Roughness Control by using Ion Polishing for Preparing of Composite Materials
3. 学会等名 IUMRS-ICAM2017(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y. V. Ivanov, H. Watanabe, N. Chikumoto, H. Takano, N. Inoue, M. Kanda, V. S. Vyatkin, S. Yamaguchi, K. Ishiyama, M. Watanabe, and T. Sawamura
2. 発表標題 Effective pumping of long HTS power transmission line insulated with heat radiation shield
3. 学会等名 EUCAS2017(国際学会)
4. 発表年 2017年



1. 発表者名 Yury V. Ivanov, Jian Sun, Vladimir S. Vyatkin, Masae Kanda, Hirofumi Watanabe, Noriko Chikumoto, *Noriyuki Inoue, Hirohisa Takano, Satarou Yamaguchi, Victor E. Sytnikov, Sergey E. Bemert, Timofey V. Ryabin and Maxim A. Romashov
2. 発表標題 On the Possibility of Using HTS Cable Lines in Construction of Submarine Power Bridges as for Connection of Sakhalin and Hokkaido Islands
3. 学会等名 1st Asian ICMC - CSSJ 50th Anniversary Conference (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 大嶋尚吾, Tallouli Mohamed, 孫建, 岩田暢祐, 芳村幸治, 神田昌枝, *井上徳之, 筑本知子, 山口作太郎, Shyshkin Oleg
2. 発表標題 REBCO 超伝導テープ線材の表面・裏面上での磁場分布測定
3. 学会等名 平成28年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 山内健吾, イワノフユウリ, ビャトキンウラジミール, 神田昌枝, 渡邊裕文, *井上徳之, 筑本知子, 山口作太郎, 宮田成紀
2. 発表標題 短絡時のベルチェ電流リードの温度上昇
3. 学会等名 平成28年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会
4. 発表年 2017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
研究分担者	細田 奈麻絵 (HOSODA Naoe) (50280954)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・構造材料研究拠点・グループリーダー  (82108)	