

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05298

研究課題名（和文）非対角熱電効果を用いた1種類の熱電材料で実現する革新的ペルチェ冷却素子の開発

研究課題名（英文）Development of New Peltier Device Based on the Off-Diagonal Thermoelectric Effect

研究代表者

高松 智寿（Takamatsu, Tomohisa）

東北大学・工学研究科・助教

研究者番号：60708428

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）：従来の型ペルチェ冷却素子の問題点は、同材料から成る性能が等しいp型とn型の熱電材料が必要となる点であった。本研究では1種類の熱電材料と金属を人工的に傾斜積層させた構造を作製することで非対角熱電効果を発現させ、1種類の熱電材料のみで構成されるペルチェ冷却素子の開発を目指した。熱電材料CrSi<sub>2</sub>とNbからなる傾斜積層構造素子を作製し、冷却性能を測定した結果、通電方向と直交する方向に温度差がつくことが確認されたことから、1種類の熱電材料のみでペルチェ冷却素子を作製することができたとと言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

クロムシリサイド（CrSi<sub>2</sub>）熱電材料を基とする傾斜積層構造を有する素子を作製し、電流を流すと、直交する方向に温度差をつけることに成功した。これは非対角熱電効果によるペルチェ冷却そのものである。つまり、1種類の熱電材料のみでペルチェ冷却素子が作製できたということは、従来の型ペルチェ冷却素子における同材料から成る性能が等しいp型とn型の熱電材料が必要ないという材料科学的制約から解放されたことを意味し、大きな意義がある。今後、さらなる高性能化により従来の型ペルチェ冷却素子を置き換えて広く応用されることが期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to develop new Peltier cooling device by fabricating a tilted multilayer structure consisting of one type of thermoelectric (TE) material and one metal based on the off-diagonal TE effect. Because a conventional -type Peltier cooling device have the problem of requiring p-type and n-type TE materials, which made of same materials, with equal performance. We have successfully fabricated the tilted multilayer structure consisting of CrSi<sub>2</sub> TE material and Nb. The results of the cooling performance study confirmed that the temperature difference was generated in the direction perpendicular to the direction of current flow, which means that new Peltier cooling device based on the off-diagonal TE effect was fabricated using only one type of TE material.

研究分野：熱電変換

キーワード：熱電変換 ペルチェ冷却 非対角熱電効果 傾斜積層構造

1. 研究開始当初の背景

ペルチェ冷却素子は、冷媒（フロン等）やコンプレッサーが不用であること、装置の小型化、振動が発生しないという長所があり、コンピュータの CPU 冷却やインターネット環境を支える光ケーブル網の温度制御に使用されており、現代社会を支える基盤技術の1つである。しかし、2種類の熱電材料を π 型の素子構造に設置する必要性から、同材料から成る性能が等しい p 型と n 型熱電材料が要求されるという問題点があった。π 型素子で利用する熱電材料は、多結晶であるためにゼーベック係数  $S$  に方向依存性はなく、印加電流の方向に熱流が生じる。しかし、層状構造を有する異方性の大きな材料の単結晶ではゼーベック係数に方向依存性が存在し、ゼーベックテンソル  $S$  として表現される。この時、 $S$  の非対角項が存在すると非対角熱電効果が発現する。しかし、大きな単結晶を得ることは難しい。そこで、熱電材料を人工的に傾斜積層させることで、大きな異方性を簡便に実現し、単結晶層状材料と同様に  $S$  の非対角項が有限の値をもつ非対角熱電効果を発現することに着目したことから[1, 2]、この傾斜積層構造による非体格熱電効果を利用すると1種類の熱電材料のみでペルチェ冷却素子を実現できるという考えに至った。

2. 研究の目的

π 型ペルチェ冷却素子において、理想的な性能を発揮するには同材料から成る性能が等しい p 型と n 型熱電材料の開発が必要であり、材料科学的に極めて難しい。つまり、1種類の熱電材料のみで構成されるペルチェ冷却素子の実現は、熱電変換の研究者にとって長年の夢である。本研究では、この材料開発の難問を、傾斜積層構造による非対角熱電効果の利用によって克服し、1種類の熱電材料で構成可能な新しいペルチェ冷却素子の実現を目指す。ここで、傾斜積層構造ではゼーベックテンソル  $S$  の非対角項による非対角熱電効果の発現により、図 1 に示すように、印加電流の向きに対してペルチェ吸熱による熱流  $\Delta Q$  が直交する。その結果、1種類の熱電材料のみで冷却素子を構成でき、かつ、図 1(b)で示すように、高い素子密度による熱流損失の少ない高効率な冷却素子を実現できる。

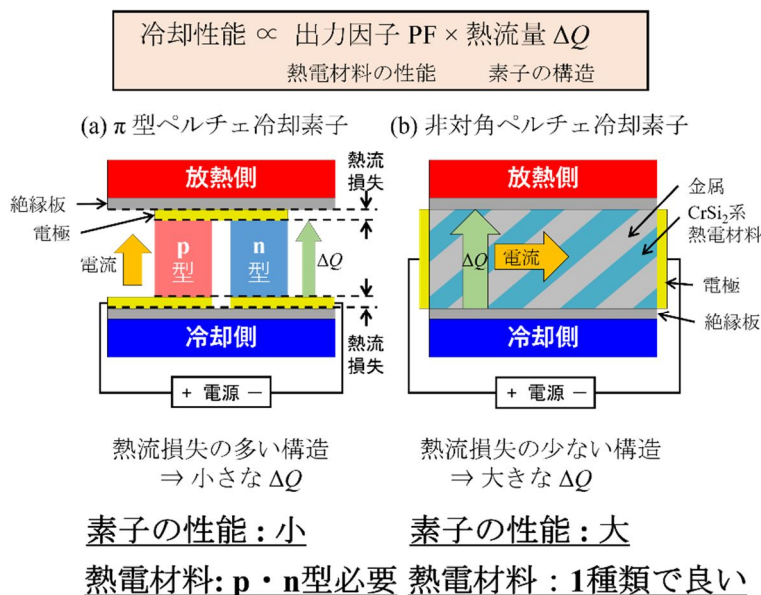


図 1. (a)従来の π 型と(b)非対角ペルチェ冷却素子の構造と特徴。

3. 研究の方法

本研究では、2段階のプロセスを経て、傾斜積層構造素子におけるペルチェ冷却素子の開発を行う。

(1)CrSi<sub>2</sub> 熱電材料を基とした傾斜積層構造素子の作製

本素子の基盤となる熱電材料は、申請者がこれまでの研究の中で高性能化を達成してきた CrSi<sub>2</sub> を利用する[3, 4]。熱電材料において性能を表すパラメータである出力因子が高い材料であるため、大きな冷却性能が期待できる。この CrSi<sub>2</sub> 熱電材料は、金属原料 Cr と Si をアーク溶解で溶融して合金化し、粉碎・混合を経て、放電プラズマ焼結法を用いてバルク焼結体として作製したものである。次に、この CrSi<sub>2</sub> 熱電材料（事前に粉末化したもの）と金属（Cu, Ti,

Nb 等) を交互にダイに詰め、放電プラズマ焼結によって積層体として焼結する。次に、ダイヤモンドカッターを用いて積層構造の焼結体に傾斜角がつくように切断することで傾斜積層構造に成型する。

#### (2)非対角熱電効果によるペルチェ冷却の性能調査

上記で作製した傾斜積層構造素子に対して、互いに直交する向きで電流端子と熱電対を配置する。直流定電流源を用いて種々の電流値を与え、素子表面の温度を熱電対およびサーモカメラにて非対角熱電効果による熱電冷却の性能を評価する。

### 4. 研究成果

#### (1)放電プラズマ焼結を用いた $\text{CrSi}_2$ 熱電材料を基とした傾斜積層構造素子の作製

まず、 $\text{CrSi}_2$  と Cu を用いて傾斜積層構造を作製することを試みた。傾斜積層構造の積層比は、文献[2]を参考にした。事前の検討の結果から、単純に  $\text{CrSi}_2$  と Cu を積層させて放電プラズマ焼結を行っても、内部の温度が通電による自己加熱により設定温度より高くなることから、融解してしまい、試料だけでなくカーボン製の専用のパンチとダイ諸共、加圧に耐えられずに破壊されてしまう。これを避けるために、本研究では、カーボン製の専用ダイの中にアルミナ製の自作のパンチとダイを組み込むことで絶縁し、通電による自己加熱を防ぐことで、設定した温度で焼結できるようにする工夫を行った。結果として、Cu の場合でも積層焼結体を作成することには成功したが、サイズが非常に小さくなってしまい、実験方法(2)において必要なサイズを得ることができなかったため、この手法は残念ながら断念した。よって、選定した金属元素の中で融点が一番高い Nb を積層構造中の金属層として用いることにした。

#### (2)非対角熱電効果によって傾斜積層構造素子に生じる温度差の測定

上記で作製した、 $\text{CrSi}_2$  熱電材料と Nb から構成される傾斜積層構造素子の冷却性能を測定するために、図 2 で示すような測定系を構築した。固定器具を用いて素子に電極を取り付け、また、素子の側面に、面として接触して温度を測定できる熱電対を固定した。図 2(a)には、本研究で用いた測定系の写真を、図 2(b)にはその模式図を示す。

次に直流定電流源を用いて電流値を変化させながら、素子の表面に生じる温度差を熱電対で測定した結果を図 3 に示す。まず、印加電流を 500mA 流した。その結果、素子の両面(電流に対して直交する面)の温度はわずかに上昇し、温度は両面でほぼ一定となることが分かった。これは、電流が流れたことによるジュール熱の発生を示しているものと考えられる。次に、500mA の電流を流して 8 分間経過した直後に、電流を 50mA へと低下させた。その結果、放熱側の熱電対と冷却側の熱電対の測定温度に差が生じはじめ、50mA を通電してから 7 分後には約 0.3 の温度差がつくことが分かった。この温度差は、傾斜積層構造によって発現する非対角熱電効果による非対角ペルチェ冷却によるものと考えられる。印可電流が大きい場合は、ジュール熱の発生が非対角ペルチェ冷却を上回るために素子の両面に温度差はつかないが、電流値が小さい場合は、ジュール熱よりも非対角ペルチェ冷却による冷却効果が上回るために素子の両面に温度差が生じたものと考察できる。なお、サーモカメラ (FLIR, C5) を利用して表面温度の測定を行ったが、0.3 の温度差を測定することは困難だった。以上をまとめると、本研究では  $\text{CrSi}_2$  と Nb から構成される傾斜積層構造素子の作製に成功し、そして、電流を印可することで素子の両面に非対角ペルチェ冷却による温度差をつけることに成功した。今後は、金属の種類の変更や積層比、および傾斜角の最適化を行い、より冷却性能が高い  $\text{CrSi}_2$  熱電材料を基とする非対角ペルチェ冷却素子の実現を目指したい。

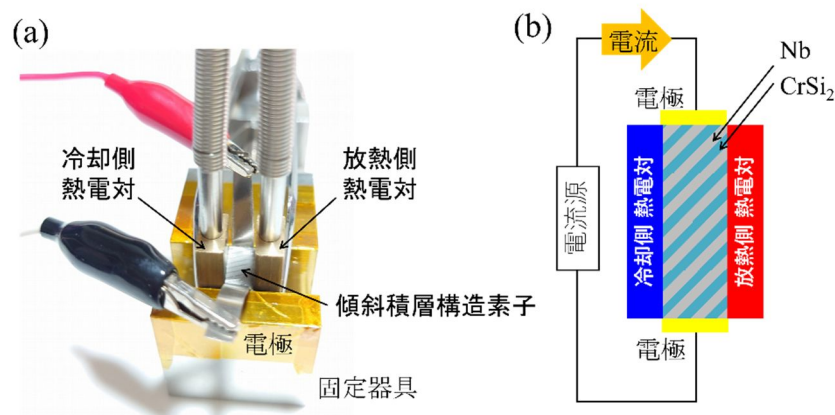


図 2. (a)作製した傾斜積層構造素子の冷却性能の測定の様子、(b)測定系を簡略化した模式図。

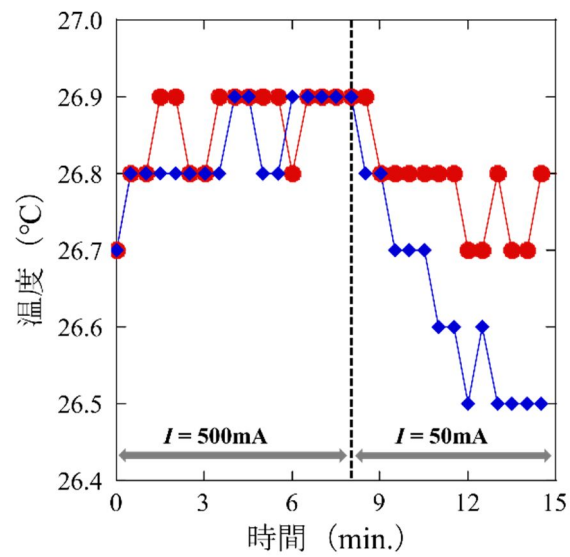


図3. 傾斜積層構造素子における温度差の印可電流および時間依存性。

< 引用文献 >

- [1] T. Kanno *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94** (2009) 061917
- [2] N. Kodaira *et al.*, J. Appl. Phys. **126** (2019)045108
- [3] H. Nagai *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55** (2016) 111801
- [4] H. Nakasawa *et al.*, Trans. Mat. Res. Soc. Jpn. **43** (2018) 85

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------