

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 1日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2009～2011

課題番号：21686012

研究課題名（和文）ナノ接合の科学基盤確立とナノ熱電デバイスの創製

研究課題名（英文） Establishment of Scientific Basis for Nano-Welding and Fabrication of Nano-Thermoelectric Devices

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

研究成果の概要（和文）：金属ナノ材料同士の接触部を、電流を付与して生じるジュール熱により溶融し、同部を高精度に接合するための科学基盤を確立した。ジュール熱ナノ溶接部の組織的・電氣的・機械的特性評価より、同溶接部が組織的に低損傷であること、また溶接に伴う物理的諸特性の劣化が極めて少ないことを示した。さらに異種金属ナノ接合部で生じるゼーベック効果を利用した機能性ナノ熱電デバイス（極微小熱電対、ナノ熱発電用回路）を試作し、応用のための基礎を開拓した。

研究成果の概要（英文）：The scientific basis for nano-welding, where the contacting portion of two thin metallic wires are melted with Joule heat and two wires are joined together, has been established. From the structural, electrical and mechanical characterizations of the Joule heat welds, it was found that the welding process was low-damage and the welds were the equal of the base metal in quality. Furthermore, functional, nano-thermoelectric devices utilizing the Seebeck effect around the dissimilar metal welds, i.e., very thin thermocouple and the circuit for nano-generator, were realized for future applications.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	9,400,000	2,820,000	12,220,000
2010年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
2011年度	4,200,000	1,260,000	5,460,000
年度			
年度			
総計	19,800,000	5,940,000	25,740,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：ナノ材料、ナノコンタクト、ナノ接合、ナノ切断、ジュール熱、自己完了、ゼーベック効果、ナノ熱電デバイス

1. 研究開始当初の背景

各種ナノ材料を利用する際、創製したナノ材料は時として所望の構造や幾何学的形状を満たさず、これら材料の形状修正（切断、等）や原子レベルでの再組み立て（接合、等）が必要となる。そこで、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ナノ材料同士の各種接合手

法の研究が世界的に進められている。他の接合手法と比較して高密度電子ビームを用いる手法は汎用性に富む優れた手法であるが、大型設備を必要とし、接合が1ヶ所毎となることに加えて、電子ビームが届きにくい影部の接合が困難であるため、三次元的な機能性デバイスの構築に不向きである。

上述の接合手法に対して、研究代表者らは

導電性ナノワイヤ同士を接触させ、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、当該ナノ材料同士を一次的に、もしくは重ねて接合する新しいナノ接合手法を提案している (H. Tohmyoh, *et al.*, *Scripta Mater.* **57**, 2007, 953)。また本手法を応用して、ナノワイヤを所望の位置で切断することにも成功している。

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。異種金属の接合部を含む電気回路において現れる熱電現象、すなわちゼーベック効果は、異種金属接合部の温度差に起因して起電力が発生する現象であり、ナノ構造体では驚くべき熱電変換効率が実現できることが最近実験的に明らかとなっている。ここに、ジュール熱を用いる独自の手法が高度化できれば、通電可能なあらゆる箇所でのナノ接合、切断が可能となり、これを利用して三次元的な異種金属ナノ接合体を構築することで、新しいナノ熱電デバイスが創製できるものと構想した。

2. 研究の目的

本研究は、金属ナノ材料同士を接触させた金属ナノコンタクト部に電流を付与して生じるジュール熱を利用して、ナノコンタクト部を局所的に溶融し、ナノコンタクト部を接合すると共に、ナノコンタクト部の徹底的な電気的・機械的特性評価によりナノ接合の科学基盤を確立する。さらに、高品質な異種金属ナノ接合部で生じるゼーベック効果を利用した機能性ナノ熱電デバイス (世界最小級の熱電対、ナノ熱発電回路) を創製することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究計画は5項目に大別される。(1) ナノワイヤ系における電気-熱問題に関する理論的考察では、同種および異種金属ナノコンタクト部で生じる電気-熱問題を理論的に考察し、ナノ領域で生じるジュール発熱現象の制御と利用に関する基礎的知見を得る。この知見に立脚し(2) 高品質金属ナノ接合を高確度を実現し、ナノ接合部の(3) 電気的、機械的特性を新規手法により評価する。さらに(4) ゼーベック効果を利用したナノ熱電デバイスを創製する。以上の成果を集約し(5) ナノ接合の科学基盤を確立する。

4. 研究成果

(1) ナノワイヤ系における電気-熱問題に関する理論的考察

二本の導電性ナノワイヤを対向させた電気-熱問題を考え、細線同士の接触部では電流集中に加え、有効体積が極めて小さいことに起因して、細線が溶融しない条件下におい

ても接触部が融点することを考察した。またこの知見に基づき、線形破壊力学におけるき裂進展現象と、当該ナノコンタクト部の溶融現象との類似性について考察し、ナノコンタクト部の溶融現象を支配する新しいパラメータを発見した(図1)。新しいパラメータはき裂問題の応力拡大係数を参照し見出されたものであり、電流、細線長、細線断面積および熱的境界条件を補正する関数から成る。当該パラメータが閾値を越える条件で細線接触部が溶融するものである。

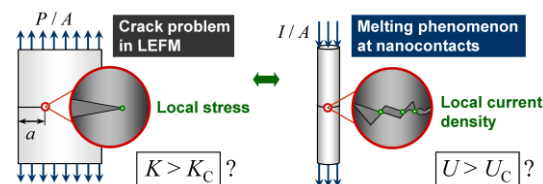


図1 き裂進展現象とナノコンタクト部溶融現象の類似性

(2) 高品質金属ナノ接合の高確度実現

① 走査電子顕微鏡組み込み型ナノ接合機構の開発

3軸ナノステージと3軸マイクロマニピュレータとを走査電子顕微鏡ステージに組み込み、ナノ接合機構を開発した。さらに接合用の電源やステージコントローラ等を真空ポートを介して走査電子顕微鏡の外部に配置することで、走査電子顕微鏡内のナノワイヤ同士の接合実験を可能にした。

当該ナノ接合機構により直径 800nm の白金 (Pt) 極細線同士を溶接すると共に溶接過程のその場観察を試み、一定直流電流の付与下においては細線接触部の溶融、凝固が自動的に進行し、溶接が自己完了できることを発見した(図2)。

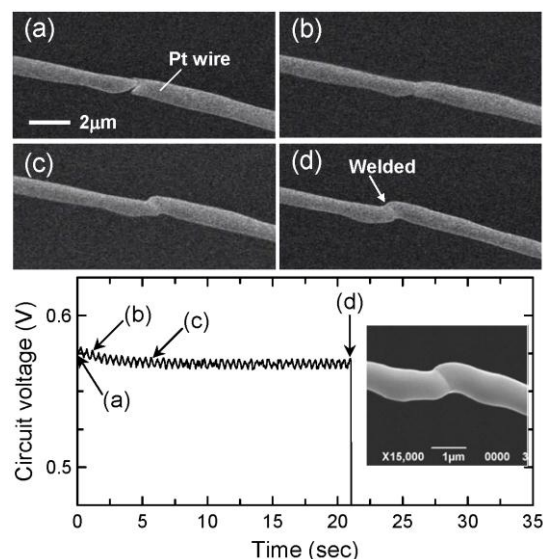


図2 白金極細線の自己完了溶接過程のその場観察 (溶接は電流付与後数秒で完了)

さらに走査電子顕微鏡内（真空環境）、および大気中において Pt 極細線の溶接実験を実施し、溶接成功条件が環境に依らず（1）で提案したナノコンタクト部の熔融現象を支配するパラメータにより統一的に整理できることを実証した（図3）。

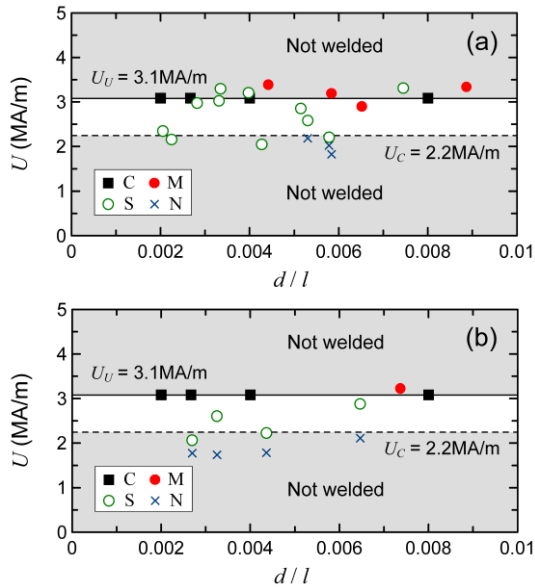


図3 ナノコンタクト部の熔融現象を支配するパラメータ U による溶接条件の規定（走査電子顕微鏡内（上）、大気中（下）のいずれの場合においても溶接成功時の U の値は環境に依らず同じ範囲に入っている）

② ナノワイヤの接合基礎実験と理論モデルとの照合

開発したナノ接合機構を駆使し、走査電子顕微鏡内で銀ナノワイヤ（Ag NW）を接合した。直径 200nm 程度の Ag NW はストレスマイグレーションを利用して基板の上に成長させた。はじめに静電引力等により Ag NW を基板から引き抜き（図4）、これを Pt プローブに固定して供試材とした。様々な長さの組み合わせの Ag NW の先端同士を接触させた状態で一定直流電流を付与し、両 NW を接合

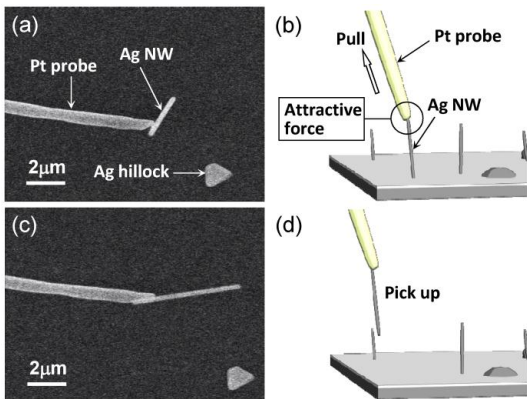


図4 Ag NW の基板からのピックアップ

した（図5）。接合過程のその場観察より、Ag NW のジュール熱接合が自己完了機構によることを見出した。また、当該 Ag NW 同士の接合条件も（1）で提案したナノコンタクト部の熔融現象を支配するパラメータにより整理できることを見出した。

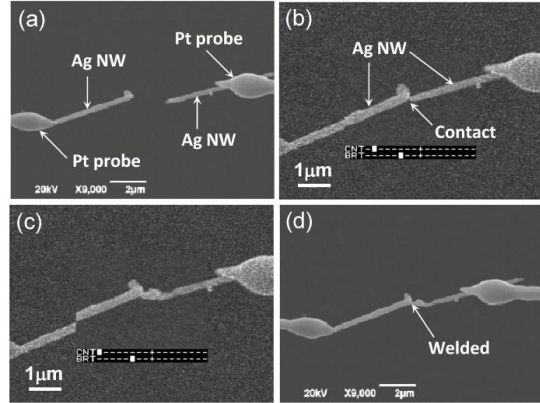


図5 Ag NW 同士のジュール熱溶接

③ 異種金属ナノ接合の実現

ナノ接合機構を用い、直径 $5\mu\text{m}$ なる Pt 細線と金（Au）細線とをジュール熱接合することに成功した。接合部の詳細な結晶構造解析の結果、異種金属ナノ接合が低熔点金属の熔融により実現できることを確認した。さらに極微小 Pt/Au 異種金属接合部を含む熱電回路チップを試作し、当該チップを用いてゼーベック効果とペルチエ効果（図6）の両方を観察することに成功した。

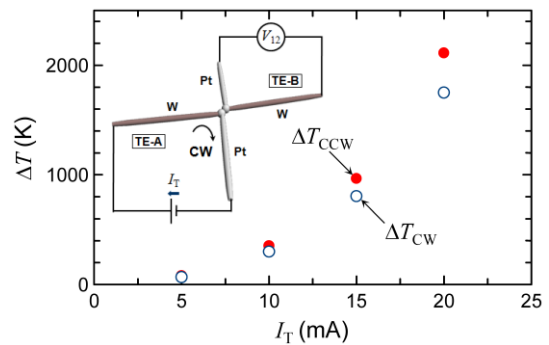


図6 電流方向による異種金属接合部温度 (ΔT) の相違（ペルチエ効果）

（3）ナノ接合部の電氣的・機械的特性評価

① 渦電流顕微鏡法による金属ナノワイヤの導電率評価

微細材料上で磁気プローブを振動させて材料内に誘導した高密度の渦電流によるプローブの振動位相変化から、当該材料の導電率を定量評価する渦電流顕微鏡法を提案した（図7）。絶縁層を有するシリコン基板の溝に固定した Pt NW 内に渦電流を形成すると共に、これをプローブの振動位相変化として検知することに成功した。

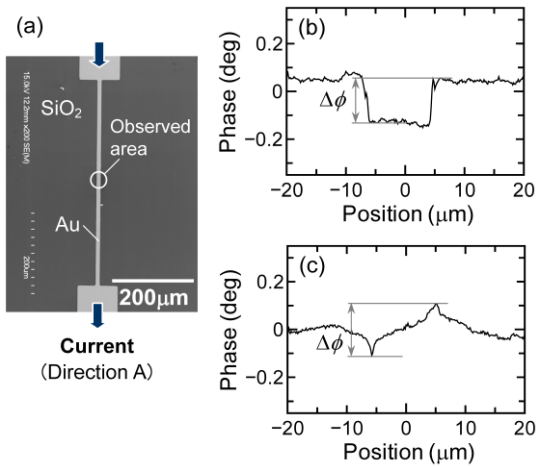


図7 渦電流顕微鏡法(サンプル(a)の非通電下において渦電流に起因した位相変化(b)が観察される。この変化は材料の導電率に比例する。一方、通電時にはサンプルからの漏洩磁場に起因した変化(c)が見られる)

② 顕微鏡組み込み型強度試験機構の開発

各種顕微鏡に設置可能な接合部強度試験機構を試作した。はじめに接合対象材料である直径 800nm の Pt 極細線に対して、互いに近接させた負荷支点を用いる極微小曲げ試験を実施し、実験結果と有限要素法解析結果とを照合して Pt 極細線の弾塑性特性を決定した(図8)。次に接合部強度試験機構上で対向した Pt 極細線同士を接合し、その後、接合部を含む Pt 極細線構造体に対して極微小引張試験を実施した。構造体は母材部で破断し、ジュール熱接合部が母材以上の強度を有することを明らかにした。

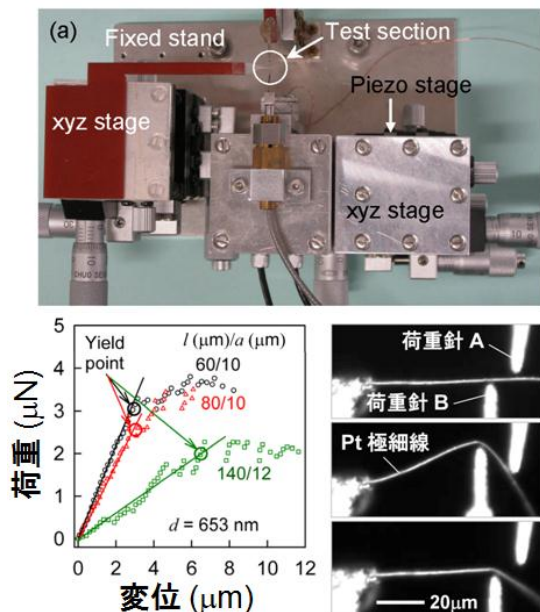


図8 Pt 極細線の極微小曲げ試験の様子((上)試作した強度試験機構と(下)荷重-変位曲線の例)

(4) ゼーベック効果を利用したナノ熱電デバイスの創製

① 極微小熱電対プローブの試作とナノ領域温度分布マッピング

中央を電氣的に絶縁した電極チップ上で直径がいずれも 5 μm の Pt 細線と W 細線とをジュール熱溶接し、世界最小級の自立型熱電対プローブ(先端寸法 10 μm 以下)を実現した。当該熱電対プローブは Pt/W 異種金属接合部と電極チップとの温度差に起因して生じる電圧(ゼーベック効果)を測定することで、測定対象物の局所的な温度計測を実現する(図9)。試作した極微小熱電対プローブを走査機構に取り付け、顕微鏡観察下において両端を Ag およびインジウム(In)で固定した通電下にある Pt 細線(直径 5 μm)の温度分布を高分解能に計測し、両端の熱容量の違いに起因して細線両端温度が異なることを見出した。またアルミニウム(Al)薄膜配線(厚さ 600nm、幅 10 μm)の温度分布計測にも成功している。

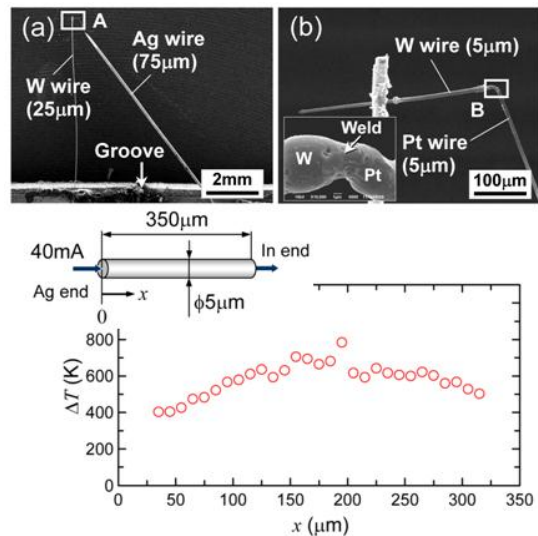


図9 極微小熱電対プローブの試作と 5 μm 細線の温度分布測定

② ナノ熱発電用回路の実現

異種金属ナノ接合部を多数内包したナノ熱発電モジュールを実現するために、高い熱電能を有する Fe NW を大量生産した。ここでは表面を酸化させた Fe 平板に曲げ応力を付与し、これを加熱することで Fe NW を大量生産する新しい手法を提案した。また高効率熱発電の鍵が平衡状態における異種金属接合部の両端の温度差にあることに鑑み、発電に適したワイヤ形状の探索を目的として様々な Fe ワイヤを含む熱電回路の試作と熱発電実験を試みた。これによりアスペクト比が 10 程度の Fe ワイヤを用いて温度差発電が可能であるとの知見を得た。以上の成果はナノ熱発電モジュールの基礎を築くものである。

(5) ナノ接合の科学基盤の確立

これまでに実施した金属ナノ・マイクロワイヤのジュール熱溶接条件を集約すると共に、これを本研究で提案したナノコンタクト部の溶融現象を支配するパラメータで整理して、高精度にナノ接合を実現するための実施要領を示した。この実施要領は細線先端同士の溶接に加えて、細線先端と細線側面との溶接にも有効であることを確認した。さらに詳細な結晶構造観察(図10)により本ジュール熱溶接部の溶接に伴う組織的損傷が極めて小さいことを実証し、応用のためのナノ接合の科学基盤を確立した。

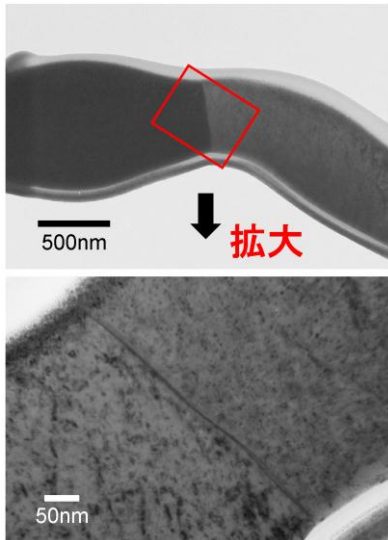


図10 ジュール熱溶接部の組織観察(従来の溶接に見られる熱影響部は存在しない)

以上の研究成果に関し、2009年10月5日付で東北大学より報道機関各位へプレスリリースを行った(図11)。また関連する研究成果を日本機械学会誌に Topic 記事として2編(微細材料および実製品の機械的特性の取得, Vol.114, 2011, p.69/金属極細線のジュール熱溶接・切断とその応用, Vol.113, 2010, p.58) 寄稿した。



図11 研究成果のプレスリリース

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. H. Tohmyoh, S. Ishikawa, M. Muraoka, Non-Contact Evaluation of the Electrical Conductivity of Thin Metallic Films by Eddy Current Microscopy, Surface and Interface Analysis, 査読有, 2012, 印刷中.
2. M.A.S. Akanda, H. Tohmyoh, M. Saka, Precision Friction Measurement between Ultrathin Wire and Microprobe, Sensors and Actuators A: Physical, 査読有, Vol.172, 2011, pp.189-194.
3. H. Tohmyoh, M.A.S. Akanda, M. Saka, Small-Span Bending Test for Determination of Elastic-Plastic Properties of Ultrathin Pt Wires, Applied Physics A, 査読有, Vol.103, 2011, pp.285-291.
4. S. Fukui, H. Tohmyoh, Tip to Side Welding of Ultrathin Pt Wires by Joule Heating, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol.50, 2011, 057201, 4 pages.
5. H. Tohmyoh, On Melting Phenomenon at Nanocontacts of Thin Metallic Wires in Comparison with Fracture Mechanics, Strength, Fracture and Complexity, 査読有, Vol.7, 2011, pp.169-175.
6. H. Tohmyoh, S. Fukui, M. Saka, Success Conditions of Welding Ultrathin Pt wires by Joule Heat, Proceedings of ICM&P2011, 査読有, 2011, CD-ROM.
7. H. Tohmyoh, T. Tanaka, S. Fujimori, M. Saka, Joule Heat Welding of Thin Metallic Wires and Thermoelectric Effects around Dissimilar Metal Weld, Proceedings of InterPACK2011, 査読有, 2011, CD-ROM.
8. H. Tohmyoh, M. Yasuda, M. Saka, Controlling Ag Whisker Growth by Using Very-Thin Metallic Films, Scripta Materialia, 査読有, Vol.63, 2010, pp.289-292.
9. M.A.S. Akanda, H. Tohmyoh, M. Saka, An Integrated Compact Unit for Wide Range Micro-Newton Force Measurement, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 査読有, Vol.4, 2010, pp.545-556.
10. H. Tohmyoh, S. Fukui, Self-Completed Joule Heat Welding of Ultrathin Pt Wires, Physical Review B, 査読有, Vol.80, 2009, 155403, 7 pages.
11. 燈明泰成, 武田大尚, アカンダ モハマド アブドゥス サラム, ジュール熱による接合を利用した白金極細線の機械的および電気的特性評価, 材料, 査読有, Vol.58, 2009, pp.847-852.

12. H. Tohmyoh, H. Takeda, M.A.S. Akanda, M. Saka, Manipulation of Thin Metallic Wires by Joule Heat Joining, Proceedings of InterPACK 2009, 査読有, 2009, 5 pages.

[学会発表] (計 20 件)

1. 渡邊彬仁, 燈明泰成, 平板からの Fe ナノ材料の大量作製, 東北学生会第 42 回学生員卒業研究発表講演会, 2012 年 3 月 6 日, 福島高専 (いわき市).
2. M. Fujimori, H. Tohmyoh, Joule Heat Welding of Ultrathin Pt Wires and Evaluation of Their Welding Area, 13th International Conference on Electronics Materials and Packaging (EMAP2011), 2011 年 12 月 13 日, Hotel Kyoto Garden Palace (Kyoto).
3. 燈明泰成, 金属極細線からの機能創出と産学共同研究の事例について(招待講演), 福島大学共生システム理工学類人間支援システム専攻 平成 22 年度研究交流会, 2011 年 2 月 19 日, コラッセふくしま (福島市).
4. 燈明泰成, M.A.S. Akanda, 坂真澄, 白金極細線の降伏現象について(優秀講演表彰), 日本機械学会 M&M2010 材料力学カンファレンス, 2010 年 10 月 9 日, 長岡技術科学大学 (長岡市).
5. M.A.S. Akanda, H. Tohmyoh, M. Saka, Behavior of Sliding Friction of Very Thin Pt Wire Against Local Contacts of Two Opposite Probes, 日本機械学会 2010 年度年次大会, 2010 年 9 月 6 日, 名古屋工業大学 (名古屋市).
6. 福井里留, 燈明泰成, 坂真澄, 銀ナノワイヤのマニピュレーションと溶接, 日本機械学会 2010 年度年次大会, 2010 年 9 月 6 日, 名古屋工業大学 (名古屋市).
7. H. Tohmyoh, M.A.S. Akanda, M. Saka, A Microscope System for Characterization of Mechanical Properties of Small-Scaled Objects, Electronics Systemintegration Technology Conference 2010 (ESTC2010), 2010 年 9 月 15 日, Maritim proArte Hotel, (Berlin, Germany).
8. S. Fukui, H. Tohmyoh, M. Saka, 3D Welding of Ultrathin Pt Wires by Joule Heating, Electronics Systemintegration Technology Conference 2010 (ESTC2010), 2010 年 9 月 15 日, Maritim proArte Hotel, (Berlin, Germany).
9. M.A.S. Akanda, H. Tohmyoh, M. Saka, Precision Friction Measurement between Ultrathin Wire and Microprobe by a Special Microforce Sensor, Eurosens XXIV Conference, 2010 年 9 月 6 日, Johannes Kepler University, (Linz, Austria).
10. 燈明泰成, 金属極細線のジュール熱溶接

とその利用について(招待講演), 日本機械学会弾性数理解析の発展と普及、利用に関する調査研究会, 2010 年 9 月 5 日, KKR 名古屋 (名古屋市).

11. H. Tohmyoh, H. Takeda, M.N.I. Khan, M. Saka, Fabrication of Freestanding Thin Pt/W Thermocouple by Joule Heat Welding, 11th International Conference on Thermal, Mechanical and Multi-Physics Simulation and Experiments in Microelectronics and Microsystems (EuroSimE 2010), 2010 年 4 月 26 日, Hotel Mercure Cite Mondiale (Bordeaux, France).
12. 石川祥甫, 燈明泰成, 村岡幹夫, 坂真澄, 金属薄膜への渦電流誘導と導電率評価, 日本機械学会東北支部第45期総会・講演会, 2010年3月12日, 東北大学 (仙台市).
13. H. Tohmyoh, S. Ishikawa, M. Muraoka, M. Saka, Excitation of Local Eddy Current in Small-Scaled Objects, The 13th Asia-Pacific Conference on Non-Destructive Testing, 2009 年 11 月 9 日, パシフィコ横浜 (横浜市).
14. 福井里留, 燈明泰成, 坂真澄, 白金極細線の自己完了溶接過程のその場観察(若手優秀講演フェロー賞), 日本機械学会東北支部第 45 期秋季講演会, 2009 年 9 月 26 日, 福島大学 (福島市).
15. 燈明泰成, 武田大尚, 坂真澄, ジュール熱接合を利用した極微小 Pt/W 熱電素子の作製, 日本機械学会 2009 年度年次大会, 2009 年 9 月 15 日, 岩手大学 (盛岡市).

[図書] (計 1 件)

1. M. Saka (Ed.), M. Saka, K. Sasagawa, M. Muraoka, H. Tohmyoh, Y. Ju (Authors), Metallic Micro and Nano Materials - Fabrication with Atomic Diffusion, Springer, 2011, pp.93-141, pp.173-220.

[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

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: