

塩見 淳一郎

東京大学大学院工学系研究科
教授

メカノ・サーマル機能化による多機能汎用熱電デバイスの開発

§ 1. 研究成果の概要

伝熱特性と機械的特性の関連に着目したメカノ・サーマル機能化の観点から、シリコン(Si)を基盤材料として低コストで応用に十分な性能指数を有する薄膜熱電材料とバルク熱電材料を開発し、さらにフレキシブルデバイス化してセンサー応用に繋げることを目的に以下の研究を進めた。

まず、1つ目の材料系として、メタルアシストエッチングで作製した Si ナノワイヤーをプラズマ焼結によってナノ構造化し、ナノ多結晶構造、ナノ細孔構造、表面・界面粗さ、メタル析出相の階層構造を有する「Si ナノ複合焼結体」を開発した。方向別の熱伝導率と電気伝導率を計測する手法によって材料の熱電性能を評価した結果、物性は概ね等方的でありながら室温の熱伝導率が最小で約 2 W/m-K となり、室温での最大性能指数として $ZT=0.3$ が得られた。熱伝導低減機構を理解するために、上記の様々なナノ構造を考慮したマルチスケールフォノン輸送シミュレーションを行い、さらにナノインデントやラマン分光測定を行った結果、界面ひずみ由来の格子の軟化によってフォノン輸送が低減(フォノンひずみエンジニアリング)していることがわかった。このひずみエンジニアリングの理解と制御性をさらに深めるために、モデル計算を行った結果、もとの界面構造によって、熱電性能指数へのひずみの影響が異なることが明らかになった。

2つ目の材料系である、Si 系ナノ構造制御薄膜については、Si/金属超格子の熱伝導率低減に有効な各層厚さとアニール条件を見出し、そのプロセス条件を基盤として Fe/FeSi 超格子薄膜熱電材料を作製した。その超格子膜厚を 1.2 nm から 1.0 nm に薄くすると、1073 K までの評価温度の向上と共に、パワーファクターが向上した。更なるアニール温度・時間と各層厚の最適化により、熱電特性向上の可能性が見出された。ひずみ印加スパッタ試料の作製に関しては、方物面基板ホルダーを用いて薄膜サンプルを作製し、膜に印加される内部応力を連続的に変化させて熱電性能評価したところ、ゼーバック効果が応力に比例して変化することを示した。ハイスループットスパッタ材料合成と熱電物性のマッピング計測に関しては、 Bi_2Te_3 熱電薄膜を傾斜加熱アニールし、結晶ひずみが連続的に変化したコンビナトリアルサンプルを作製し、その熱電・結晶特性を取得した。

さらに、それらを機械学習することにより、 Bi_2Te_3 熱電薄膜のc軸に1~2%のひずみを印加させることが熱伝導特性向上に有効であることを示した。

延伸性を有する熱電デバイスの設計および評価に関しては、導電性の高い波形状金属配線と発電性能の高い無機本導体熱電素子を併せ持つことで、伸縮性と性能性を兼ね備えた熱電発電デバイスを実現した。デバイスの構造としては、1つの大きさが $1.5\text{ mm} \times 1.5\text{ mm} \times 1.0\text{ mm}$ の36個の熱電素子を波形状銅配線で π 型に接続したものをシート状のPDMSに埋め込む構造とした。

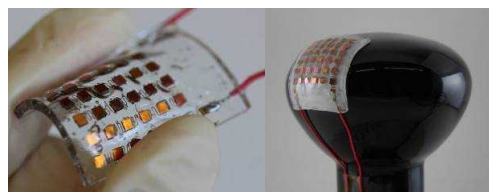


図 1 試作した延伸性を有する熱電デバイス。屈曲性・延伸性を有するため、曲面への貼付が可能である。

図に示すように、製作したデバイスを熱源に貼り付け、自然対流によって放熱を行ないながら、出力電圧の計測を行った。その結果、平面、曲面を有する熱源にそれぞれデバイスを貼り付けた場合を比較において、ほぼ同じ大きさの出力電圧が得られることを示した。

【代表的な原著論文】

1. Makoto Kashiwagi, Yuta Sudo, Takuma Shiga, and Junichiro Shiomi, Modelling heat conduction in nanoporous silicon with geometry distributions, *Physical Review Applied*, **10**, 044018 (2018).
2. Masaki Yamawaki, Masato Ohnishi, Shenghong Ju, Junichiro Shiomi, “Multifunctional structural design of graphene thermoelectrics by Bayesian optimization”, *Science Advances*, **4**, eaar4192 (2018).
3. Kana Fukuie, Yoshitaka Iwata, Eiji Iwase, “Design of substrate stretchability using Origami-like folding deformation for flexible thermoelectric generator,” *Micromachines*, **9**, 130 (2018)

§ 2. 研究実施体制

(1) 塩見グループ(研究機関別)

- ① 研究代表者:塩見 淳一郎 (東京大学工学系研究科 教授)
- ② 研究項目
 - ・ナノ構造の熱電特性設計
 - ・ナノ構造膜の熱電特性評価
 - ・局所熱電測定による制御の高度化
 - ・ひずみ熱電エンジニアリングの実証
 - ・マテリアルズ・インフォマティクスモデルの構築と最適化
 - ・シリコン複合ナノ焼結体の作製・評価

(2) 後藤グループ(研究機関別)

- ① 主たる共同研究者:後藤 真宏
(物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究拠点、主席研究員)
- ② 研究項目
 - ・モデルナノ構造膜の作製
 - ・ひずみ印加スパッタ試料の作製
 - ・ハイスループットスパッタ材料合成
 - ・熱電物性のマッピング計測

(3) 岩瀬グループ(研究機関別)

- ① 主たる共同研究者:岩瀬 英治 (早稲田大学 理工学術院、准教授)
- ② 研究項目
 - ・熱電材料のフレキシブル基板への転写
 - ・伸縮配線および機構の搭載
 - ・柔軟性(延伸性)の評価
 - ・フレキシブル基板の高熱伝導化