微小エネルギーを利用した革新的な環境発電技術の創出 2019年度採択研究代表者

2019 年度 実績報告書

渡邉 孝信

早稲田大学理工学術院 教授

プレーナ型スケーラブル熱電発電機構の実証と展開

§1. 研究成果の概要

CREST プロジェクト前半フェーズ(2015~2018年度, JPMJCR15Q7)で創出した "スケーラブルな プレーナ型シリコン(Si) 熱電発電デバイス"の実証研究に取り組むとともに、この技術をカーボンナノチューブ (Carbon Nano-Tube; CNT) 熱電シート材料、ならびに IV 族混晶半導に展開する研究 に取り組んだ。

本年度は提案デバイスの高密度集積化に向けた詳細設計に取り組んだ。その結果、単位面積あたりから出力できる発電量を最大化する定量的な指針を見出し、液浸 ArF 露光を用いたナノスケール・リソグラフィ技術と多層配線技術を駆使して集積熱電モジュール(図1参照)を作製するための詳細仕様を固めた。製造プロセスの検討も進め、外部の熱源からデバイス内の局所領域に熱を伝えるヒートガイド層の最適な材料の組み合わせとプロセス条件を見出した。

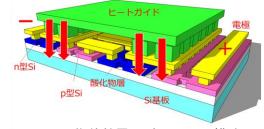
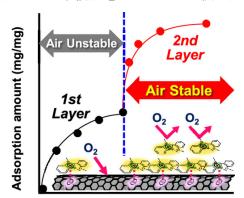


図1 S i 集積熱電モジュールの模式図



Equilibrium concentration (mM)

図2 等温吸着曲線とドーパントによる CNT表面被覆状態の模式図

CNT熱電シート材料への応用にあたって課題となる大気中でのキャリアの極性の安定化に関して、本研究ではじめてそのメカニズムを明らかにし、材料設計指針を示した。研究分担者の藤ヶ谷がさきがけプロジェクト(2015~2018年度,JPMJPR15R6)で見出していたベンズイミダゾール誘導体のドーピングによるカーボンナノチューブの大気安定 n型化において、その大気安定化のメカニズムがドーパント分子による表面被覆によることを吸着等温測定から突き止めた(図2参照)。

IV 族混晶に関しては、提案デバイス構造を最大限に活かせる成膜プロセスを本研究で開発した。研究

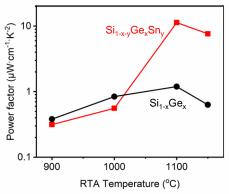


図3 SiO₂上に形成したp型多結晶 SiGeSn 三元混晶薄膜のパワーファ クタ

分担者の黒澤がさきがけプロジェクト (2015~2018 年度,JPMJPR15R2) で開発した SiGe 混晶薄膜 に、新たに Sn を添加した SiGeSn3元混晶薄膜を作製し、1150 $^{\circ}$ 熱処理において結晶粒径が 3 倍 以上となることを見出した。この結果、図3に示すように SiGe2元混晶よりもさらに高い正孔移動度、ゼーベック係数が得られ、室温で 10 μ Wcm $^{-1}$ K $^{-2}$ を超えるパワーファクタ、0.31 の熱電性能指数が 実現された。

【代表的な原著論文】

- Takanobu Watanabe, Motohiro Tomita, Tianzhuo Zhan, Keisuke Shima, Yuya Himeda, Ryo Yamato, Takashi Matsukawa, Takeo Matsuki, "Cavity-Free Micro Thermoelectric Energy Harvester with Si Nanowires," ECS Transactions 89, pp.95-110 (2019).
- Y. Nakashima, R. Yamaguchi, F. Toshimitsu, M. Matsumoto, A. Borah, A. Staykov, M. Saidul Islam, S. Hayami, T. Fujigaya "Doped with Benzimidazole Derivatives for Thermoelectric Conversion and their Air-stable Mechanism" ACS Applied Nano Materials, 2, 4703-4710 (2019).
- 3. Y. Peng, L. Miao, J. Gao, C. Liu, M. Kurosawa, O. Nakatsuka, and S. Zaima, "Realizing High Thermoelectric Performance at Ambient Temperature by Ternary Alloying in Polycrystalline Si1-x-yGexSny Thin Films with Boron Ion Implantation," Scientific Reports, Vol. 9, No.1, pp.14342-1~9 (2019/10/04).

§ 2. 研究実施体制

(1)渡邉グループ

- ① 研究代表者:渡邉 孝信(早稲田大学理工学術院 教授)
- ② 研究項目
 - ・集積化 Si ナノワイヤ熱電モジュールの開発
 - ・高精度熱電特性評価手法の開発
 - ・ナノスケール局所熱電物性評価
 - ·IV 族混晶デバイス用プロセス技術の開発
 - ・プレーナ型熱電発電デバイスの社会実装形態の検討

(2)鎌倉グループ

- ① 主たる共同研究者:鎌倉 良成 (大阪工業大学情報科学部 特任教授)
- ② 研究項目
 - ・フォノン・ドラッグモンテカルロシミュレーション
 - ・プレーナ型熱電発電デバイスの社会実装形態の検討

(3) 藤ヶ谷グループ

- ① 主たる共同研究者:藤ヶ谷 剛彦 (九州大学工学研究院 教授)
- ② 研究項目
 - ・CNT シート伝導異方性制御技術の確立
 - ・パターンドーピング法の開発
 - ・CNT シート熱電デバイスの最適設計

(4) 黒澤グループ

- ① 主たる共同研究者:黒澤 昌志 (名古屋大学大学院工学研究科 講師)
- ② 研究項目
 - ·IV 族混晶半導体熱電材料の探索
 - ・IV 族混晶デバイス用プロセス技術の開発