ジュール熱溶接による熱電回路の作製と高効率化のための試み Fabrication of Thermoelectric Circuit by Joule Heat Welding and Some Approaches to Enhance the Generation Efficiency

○学 渡邊 彬仁 (東北大) 正 燈明 泰成 (東北大)

Akihito WATANABE, Tohoku University, Aoba 6-6-01, Aramaki, Aoba-ku, Sendai

Hironori TOHMYOH, Tohoku University

Key words : Joule Heat Welding, Bi-Metal Joints, Thermoelectric Circuit, Optimum Length, Efficiency

1. 緒 言

近年、太陽光や風力といった再生可能な自然エネルギーの利用が増加している。中でも工場や家電等の廃熱を利用した熱発電がクリーンなエネルギーの創出方法として期待されている。熱発電には熱電変換現象の一つであるゼーベック効果を用いる。物質に温度差 ΔT を与えると高温側から低温側へのキャリアの移動が生じる。これによって物質に熱起電力 ΔV が発生する現象がゼーベック効果である。より大きな ΔV を得るためには、高い熱電能力を有する材料の利用や、回路内に大きな ΔT を発生させる必要がある。

前者に関して、高い熱電能力を有する Bi_2Te_3 ^[1]などを使用した熱電デバイスが開発されている。また、 SiO_2 ナノワイヤの巨大な熱電能力が発見されるなど^[2]、微細材料を用いて熱電変換効率が向上できる可能性がある。後者の ΔT の増大に関して、微細材料を用いた場合は省スペース化等の観点からデバイス内に低温部を確保することが難しく、これをいかに実現するかが重要となってくる。そのために低温部を作り出す様々な手法が検討されている^[3]。

ところで微細材料の利用においては、ボトムアップでの組み立て技術の一つである溶接技術が必要不可欠である。提案されている様々な微細材料の溶接手法の中でも、材料に電流を付与した際に材料同士の接触点で発生するジュール熱を利用した溶接手法は、大型の装置を必要とせず、一定直流電流の付与下で溶融から凝固までが自己完了できるといったデバイス作製時の様々な利点がある^[4]。

そこで本研究では、直径 $100\ \mu\text{m}$ の Fe, Al マイクロ細線を用いて、異種金属細線のジュール熱溶接条件を見出すと共に、この手法を用いて熱電回路を作製することを目的とする。細線長さを変更する回路内の Thermal management によって当該回路の発電効率が向上できることを示す。

2. 異種金属マイクロ細線のジュール熱溶接条件

ジュール熱溶接は一定直流電流 I の付与下で溶接が自己完了する手法であり^[5]、溶接の可否は I に依存する。そこで本研究では直径 $100\ \mu\text{m}$ の Fe, Al マイクロ細線の切断および溶接実験を行った。これらはコモンメタルであり、原子拡散現象を利用したナノワイヤ作製事例も報告されている^[5]。実験回路の模式図を図 1 に示す。切断実験では I を上昇させ、溶断した時の I を切断電流値 I_c とした。溶接実験では I を付与した後に溶接の可否を溶接部に力を作用させることで確認した。また、溶接完了後も細線が切断されるまで I を増大させた。

実験より得られた通電区間の長さ l_0 と I との関係を図 2(a)、溶接部の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を図 2(b) に示す。図 1 より溶接成功の下限電流値は Fe マイクロ細線の切断電流値の約 70% であることがわかる。これは過去の Pt 極細線のジュール熱溶接における事実と一致している^[4]。また、溶接成功の上限電流値が Fe マイクロ細線の切断電流値とほぼ同じであり、溶接後の切断位置が Fe 側であったことより、Fe, Al マイクロ細線のジュール熱溶接では Fe の溶融現象が支配的である。一方、Fe と Al の融点はいずれも 1813, 933 K であり、Fe の融点の方が高い。

Fe と Al の単位体積当たりの熱容量はそれぞれ 3.53×10^6 , $2.43 \times 10^6\ \text{J/m}^3/\text{K}$ であり、両者の値はほぼ同程度である。これより両細線に同等なジュール熱が加えられた際の温度上昇はほぼ同等であると考えられる。そこで Fe と Al のジュール熱について考える。 I を付与した際にマイクロ細線で発生するジュール熱は I とマイクロ細線の電気伝導率に依存する。Al の電気伝導率は Fe の約 3.7 倍であり、同じ I の付与下において Fe マイクロ細線は Al マイクロ細線に比べて約 3.7 倍のジュール熱を発生させる。次に熱の逃げについて考える。本実験は大気中に行っているため、ジュール熱は大気へ放熱したり、通電プローブへの伝熱するため、全てが細線の温度上昇に消費されるわけではない。Al の熱伝導率が Fe の約 3 倍であることから、Al マイクロ細線の方が Fe よりも大きなジュール熱損失があると考えられ、温度上昇しづらいと考えられる。これらのことから、Fe, Al マイクロ細線の溶接条件は融点だけではなく、材料の電気的・熱的特性に大きく依存することがわかる。

3. 熱電回路の作製と熱起電力測定

3.1 局所的加熱手法 ジュール熱溶接手法を用いて図 3(a) に示すような熱電回路を作製した。異種金属接合部を局所的な高温部とするために、金属細線のジュール発熱を利用したヒータワイヤを用いた。金属細線に I を付与した際、細線は中央部で最大温度 T_H となり、以下で表すことができる^[6]。

$$T_H = \frac{1}{8K\sigma} \left(I \frac{l_0}{A} f \right)^2 + T_0 \quad (1)$$

Fig.1 (a) Schematic of cutting microwires. (b) Schematic of welding microwires.

Fig.2 (a) Relationships between I for welding and l_0 . (b) SEM micrograph of weld.

Fig.3 (a) Thermoelectric circuit by joining Fe and Al microwires using Joule heat. (b) Relationships between ΔV and I for various lengths of Fe and Al microwires. (c) Relationships between ΔV and T_E .

ここで、 K は熱伝導率、 σ は電気伝導率、 A は細線断面積、 f は熱的境界条件を補正する関数、 T_0 は雰囲気温度である。本研究では長さ 60 mm のヒータワイヤを使用し、実験により求めた f の値は 0.42 であった。ヒータワイヤに付与する I を制御することで、接合部温度 T_C の温度制御を行った。ここでヒータワイヤの接触による熱的損失を考慮すると T_H と T_C は必ずしも一致しない。そこで熱的結合係数 C を導入し、 T_C が以下のように表せると考えた。

$$T_C = T_H C + T_0 (1 - C) \quad (2)$$

3.2 熱起電力とゼーベック係数測定 回路路内の Thermal management を細線長さによって行うために、 $l = 5, 10, 20$ mm において発生する ΔV を測定した。 I と ΔV との関係を図 3(b) に示す。図より I が大きい程、発生する ΔV は大きくなっており、この現象は I が大きく、また T_C が高温になる程顕著である。本研究で回路作製に用いた溶接手法、および細線の種類が同一であったことから、回路のゼーベック係数 S は l によらず一定であると考えられる。また T_C がヒータワイヤによって一定に保たれていることから、 l によって細線端部温度 T_E が変化したものと考えられる。この結果より、効率的な熱発電のためには l を増大させれば良いといえる。しかしながら、 l を増大させることで回路サイズが増大してしまう。そのため、最少の長さで回路内に最大の温度勾配を発生させることのできる適切な回路長さを選定する必要がある。このために回路のゼーベック係数を測定すると共に、回路の温度勾配について考える。

S の測定には回路内の ΔT を制御する必要があることから、端部をセラミックヒータで加熱し T_E を制御した。また、ヒータワイヤには $I = 900$ mA を付与し、 T_C を一定に保った。 T_E と ΔV の関係を図 3(c) に示す。これより l によって ΔV がほぼ変化していないことがわかり、 ΔV が制御できていることがわかる。この時の S は式で表される。

$$S = -\frac{\Delta V_1 - \Delta V_2}{T_{E1} - T_{E2}} \quad (3)$$

ここで添え字は、任意の点 1, 2 における ΔV と T_E である。式(1)より図 3 は直線で近似することができ、その傾きが S である。これより $S = 8.4 \mu V/K$ と算出された。また $\Delta V = 0$ となる時は $\Delta T = 0$ と考えられ、 $T_E = T_C = 333$ K とわかる。この結果より $C = 0.32$ とわかり、任意の I の付与下における T_C を導出することが可能となった。

Fig.4 (a) Variations of ΔT against l for each T_C . (b) Relationships between l_C and T_C .

4. 最適回路長

実験結果を基に一元熱伝導モデルを作成することで、最適な回路長の選定手法を考案する。Fe と Al のゼーベック係数を比較すると Fe の方が約 10 倍大きいことから、当該回路においては Fe の温度勾配が重要であるといえる。そこで Fe 細線に関して以下に示す定常状態の一次元熱伝導方程式を考える。

$$K \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - \frac{hp}{A} (T - T_0) = 0 \quad (4)$$

ここで、 h は熱伝達率、 p は周囲長さである。本研究では $h = 500$ W/(m² K) とした。ヒータワイヤ接触部を $x = 0$, $T = T_C$, Fe マイクロ細線端部を $x = l$, $\partial T / \partial x = 0$ の境界条件下で解き、回路内の ΔT を導出する。

$$\Delta T = (T_C - T_0) \cdot \left(1 - \frac{2}{e^{\lambda l} + e^{-\lambda l}} \right) \quad (5)$$

ここで $\lambda^2 = hp / KA$ である。この計算結果と、実験により得た各 T_C における ΔT と l との関係を図 4(a) に示す。図より ΔT がある l にて飽和する傾向がみて取れる。この飽和し始める長さを最適回路長 l_C と考え、これを求める。 ΔT を l で偏微分した $\partial(\Delta T) / \partial l$ がある値 W よりも小さくなる時の l を l_C とすれば、

$$l_C = \frac{1}{\lambda} \cosh^{-1} \left(\sqrt{\frac{1 + \sqrt{1 - 4g}}{2g}} \right) \quad (6)$$

ここで $g = (W / T_C - T_E)^2$ である。本研究では $W = 0.1$ K/mm として導出した l_C を図 4(b) に示す。これより、 T_C に応じた l_C を算出、選択することが可能となった。

5. 結 言

本研究では、直径 100 μm の Fe, Al マイクロ細線の異種金属ジュール熱溶接条件をはじめて見出すことに成功した。また、同溶接手法を駆使して微小熱電回路を作製し、当該回路の熱起電力を測定した。さらに当該回路のゼーベック係数を算出すると共に一次元熱伝導モデルを作成して高効率熱発電のための、高温部温度に応じた最適な細線長さ設計指針を提案した。

本研究の遂行に際し、有益なご議論を賜りました東北大学 坂真澄教授に感謝の意を表します。また本研究が科学研究費補助金 若手研究(A)24686016 によったことを記し、謝意を表します。

参考文献

- [1] S.A. Whalen, C.A. Applett & T.L. Aselage, *J. Power Sources*, **180** (2008) 657.
- [2] A.I. Boukai, Y. Bunimovich, J. Tahir-Kheli, J. Yu, W.A. Goddard III & J.R. Heath, *Nature*, **451** (2008) 168.
- [3] J. Yu & H. Zhao, *J. Power Sources*, **172** (2007) 428.
- [4] H. Tohmyoh & S. Fukui, *Phys. Rev. B*, **80** (2009) 155403.
- [5] H. Tohmyoh & A. Watanabe, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82** (2013) 044804.
- [6] H. Tohmyoh, *J. Appl. Phys.*, **105** (2009) 014907.