

ナノスケール・サーマルマネジメント基盤技術の創出  
2018年度採択研究代表者

2021年度 年次報告書
-----------------

竹内 恒博

豊田工業大学 大学院工学研究科  
教授

異常電子熱伝導度と異常格子熱伝導度の制御

## § 1. 研究成果の概要

### 異常熱伝導度の起源の実験的解明と革新的熱利用素子の開発研究(竹内 G)

(Ag,Cu)-(S,Se,Te)を用いて高性能熱利用素子の開発研究を行い, 数倍の熱流変化を示す熱流スイッチング素子[1], 約 3 倍の整流効果を示す熱ダイオード, 水の沸点付近で巨大な無次元性能指数 ( $ZT = 20$ ) を示す熱電材料や高温で  $ZT > 1.6$  を示す熱電材料を開発した[2].

### トポロジカル物質における表面状態の電子・熱輸送現象への寄与の解明(谷垣 G)

表面状態に特異なディラック電子を有するトポロジカル物質において, 気相成長単結晶薄膜 (Bi-Sb-Te-Se) およびテープ剥離単結晶薄膜 (Sn-Bi-Sb-Te-S) を用いて, 2 次元物質の中では最大の熱電変換パワー因子 ( $P = S^2 \sigma$ ) の可能性を示し, その理由をディラック電子の特異性と緩和時間の観点から解明した.

### 銀カルコゲナイド系材料の熱伝導度解析(分子動力学法シミュレーション)(下條 G)

人工ニューラルネットワークに基づく原子間ポテンシャルによる厳密な熱流束の表式[3]を用いて,  $\text{Ag}_2(\text{S,Se})$  に対して, 低温相から超イオン導電相までの格子熱伝導度の温度依存性計算を行った.  $\text{Ag}_2\text{S}$  の剪断応力印可時の構造回復の機構に対する Se 添加の影響を定量的に解明するとともに, 超イオン導電相における延性発現機構を予測した.

### 第一原理計算による熱電材料のデザインと久保・グリーンウッド公式による伝導特性解析(佐藤 G)

$\text{Cu}_2\text{S}$  熱電材料の構造モデルを提案しボルツマン理論により輸送特性を計算した[3]. Si-Ge 熱電材料について格子振動と不純物効果を取り入れた電子状態を KKR-CPA 法により計算し, 久保・グリーンウッド公式によるゼーベック係数計算から Fe 添加効果を定性的に説明した.

### 異常熱物性を示すモデル薄膜のナノスケール評価(岡田 G)

磁性を有する高品質カルコゲン化合物薄膜を作製し, その先端分光を行った. 原子配列, 電子構造, さらに磁場で変化する電子構造に関する精密情報を取得し, 磁性が熱電変換に与えるシナジー効果を制御する材料設計指針を構築した.

## § 2. 研究実施体制

### (1) 竹内グループ

- ① 研究代表者: 竹内 恒博 (豊田工業大学 大学院工学研究科 教授)
- ② 研究項目
  - ・ 特定の材料系で観測される異常電子熱伝導と異常格子熱伝導度の解析
  - ・ 高性能熱利用素子(熱ダイオード, 熱流スイッチング素子, 熱発電素子)の開発

### (2) 谷垣グループ

- ① 主たる共同研究者: 谷垣 勝己 (東北大学 材料科学高等研究所 名誉教授)
- ② 研究項目
  - ・ 無触媒気相エピタキシャル成長法およびテープ剥離法を用いた Bi 系単結晶トポロジカル物質薄膜の成長とフォノンおよび電子状態制御と機能性熱利用
  - ・ 物質のナノ構造制御によるフォノンと電子の制御
  - ・ 電子相転移および磁気相転移が及ぼす熱電変換現象の解明

### (3) 下條グループ

- ① 主たる共同研究者: 下條 冬樹 (熊本大学 大学院先端科学研究部 教授)
- ② 研究項目
  - ・ 異常格子熱伝導度の第一原理に基づく分子動力的解明
  - ・ 銀カルコゲナイドにおける延性発現機構の第一原理分子動力学解析
  - ・ イオン導電体の熱的性質に関する理論的研究
  - ・ トポロジカル絶縁体の電子・格子熱伝導機構に関する理論的研究

### (4) 佐藤グループ

- ① 主たる共同研究者: 佐藤 和則 (大阪大学 大学院工学研究科 准教授)
- ② 研究項目
  - ・ QSGW 法によるカルコゲナイド系の電子状態の高精度計算
  - ・ 電子系伝導現象のボルツマン理論による取り扱いと SiGe および銀・銅カルコゲナイド系材料のデザイン
  - ・ 電子系伝導現象の久保・グリーンウッド公式による計算法の開発と応用

### (5) 岡田グループ

- ① 主たる共同研究者: 岡田 佳憲 (沖縄科学技術大学院大学 量子物質科学ユニット 准教授)
- ② 研究項目
  - ・ 磁性半金属カルコゲン化合物  $\text{Cr}_{1+\delta}\text{Te}_2$  の薄膜作製
  - ・ 分光による電子状態の解明
  - ・ 磁場中熱電効果の測定

【代表的な原著論文情報】

- 1) “Capacitor-type thin-film heat flow switching device”Low-temperature acanthite-like phase of  $\text{Cu}_2\text{S}$ : Electronic and transport properties”, K. Hirata, T. Matsunaga, S. Singh, M. Matsunami, and T. Takeuchi, Japanese Journal of Applied Physics **60**, 124004 (2022).
- 2) “Synergetic Enhancement of the Power Factor and Suppression of Lattice Thermal Conductivity via Electronic Structure Modification and Nanostructuring on a Ni- and B-Codoped p-Type Si-Ge Alloy for Thermoelectric Application”, O. Muthusamy, S. Singh, K. Hirata, K. Kuga, S. K. Harish, M. Shimomura, M. Adachi, Y. Yamamoto, M. Matsunami, and T. Takeuchi. ACS Applied Electronic Materials **3**, 5621–5631 (2021).
- 3) “Estimating Thermal Conductivity of  $\alpha$ - $\text{Ag}_2\text{Se}$  Using ANN Potential with Chebyshev Descriptor”, K. Shimamura, Y. Takeshita, S. Fukushima, A. Koura, and F. Shimojo, Chem. Phys. Lett. **778**, 138748 (2021).
- 4) “Low-temperature acanthite-like phase of  $\text{Cu}_2\text{S}$ : Electronic and transport properties”, H. N. Nam, K. Suzuki, T. Q. Nguyen, A. Masago, H. Shinya, T. Fukushima and K. Sato, Phys. Rev. B **105**, 075205 (2022).
- 5) “Widely Tunable Berry curvature in the Magnetic Semimetal  $\text{Cr}_{1+d}\text{Te}_2$ ”, Y. Fujisawa, M. Pardo-Almanza, C. H. Hsu, A. Mohamed, K. Yamagami, A. Krishnadas, F. C. Chuang, K. H. Khoo, J. Zang, A. Soumyanarayanan, Y. Okada, [DOI:<https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-1517784/v1>]