

「ナノスケール・サーマルマネージメント基盤技術の創出」
平成 29 年度採択研究代表者

H29 年度
実績報告書

宮崎 康次

九州工業大学
大学院工学研究院
教授

有機－無機ヘテロ界面によるフォノン・電子輸送フィルタリング

§ 1. 研究実施体制

(1) 宮崎グループ

- ① 研究代表者：宮崎 康次（九州工業大学大学院工学研究院 教授）
- ② 有機－無機ヘテロ界面のフォノン、電子輸送メカニズムの解明とその応用
・有機－無機材料の積層薄膜生成と界面熱抵抗測定

(2) 早瀬グループ

- ① 主たる共同研究者：早瀬 修二（九州工業大学大学院生命体工学研究科 教授）
- ② ペロブスカイト充填細孔構造生成
・ペロブスカイト薄膜生成とその評価

(3) 飯久保グループ

- ① 主たる共同研究者：飯久保 智（九州工業大学大学院生命体工学研究科 准教授）
- ② 第一原理計算による安定構造解析とフォノン・電子輸送計算
・ペロブスカイト構造の置換元素種の違いによる安定性評価

§ 2. 研究実施の概要

有機-無機材料の積層薄膜生成と界面熱抵抗測定として、室温で最も高い熱電特性を示す Bi_2Te_3 を無機材料、PEDOT:PSS を有機材料の組み合わせとして図 1 に示すような積層薄膜を生成し、その熱抵抗を 3ω 熱伝導率測定法により測定した⁽¹⁾。界面熱抵抗測定には、 Bi_2Te_3 と PEDOT:PSS のそれぞれの膜厚を変えること、その積層順を入れ替えることが必要となるが Bi_2Te_3 薄膜生成には同軸型アークプラズマ蒸着法、PEDOT:PSS 薄膜生成にはスピコーティング法を用いることで、必要な膜厚を制御してアルミナ基板上に生成した。図 1 断面観察結果からは膜同士はよく密着しており、明らかな空隙は観察されなかった。それぞれ生成した積層薄膜の全熱抵抗と構成する材料の膜厚の測定結果から計算される界面熱抵抗は $1.1 \times 10^{-7} (\text{m}^2 \cdot \text{K}) / \text{W}$ となった。一般的に界面熱抵抗は 10^{-10} から $10^{-7} (\text{m}^2 \cdot \text{K}) / \text{W}$ 程度までの報告例が多いが、無機-無機材料界面のもつ熱抵抗が $10^{-9} (\text{m}^2 \cdot \text{K}) / \text{W}$ 程度の報告例が多いことを考えると、通常より 100 倍も大きい熱抵抗となっている結果が得られた。 Bi_2Te_3 -PEDOT:PSS 混合熱電薄膜の熱伝導率は、従来の経験式よりも低い値が測定され、その結果、高い熱電特性を示していた。これまでその特別に低い熱伝導率は明確に説明されてこなかったが、今回の結果により、その熱伝導率低減メカニズムを定量的に説明できた。今後、その大きな界面熱抵抗発生メカニズムの解明が課題である。一方で、ペロブスカイト構造 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ の安定構造(図 2)と置換元素種による安定性の評価、

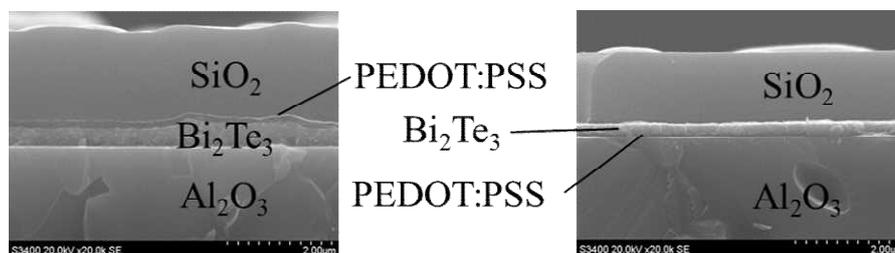


図 1 Bi_2Te_3 -PEDOT:PSS 積層薄膜断面の走査型電子顕微鏡観察結果。

さらにはその熱電特性について第一原理計算を進めている。 Sn サイトに濃度 $1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ で Ti , Cr , Zn , 空孔を導入して計算したところ、空孔を導入した構造の熱電特性 ZT が倍程度高くなり、ゼーベック係数の増大に起因している結果が得られた。引き続き、このゼーベック係数増大のメカニズム詳細を調べる。

(1) 栗山 洸、矢吹 智英、宮崎 康次、”3 オメガ法を用いた有機-無機界面の熱抵抗測定”、Thermal Science and Technology(投稿中)。

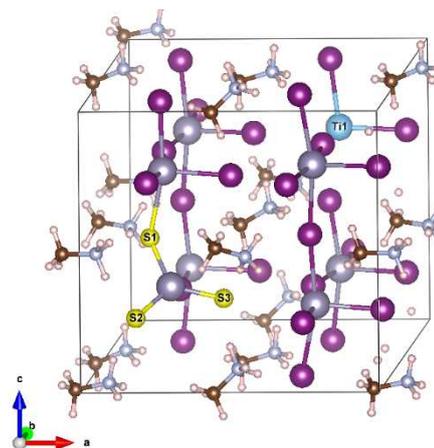


図 2 ドープした $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ の結晶構造モデル