

李 哲虎

産業技術総合研究所省エネルギー研究部門
主任研究員

ラットリングとローンペアの融合的活用による熱電材料の開発

§ 1. 研究成果の概要

2018 年度は以下の研究を実施した

1) As 系 122Zintl 相の新規熱電材料の発見[1]

高い熱電性能を得るには格子熱伝導率をできる限り低く抑える必要がある。格子熱伝導率の抑制には様々な方法が提唱されているが、今回我々はローンペアによる熱伝導率の抑制に着目した。122Zintl 相はニクトゲンがローンペアを持ち、低い格子熱伝導率が得られる。本研究では As 系 122Zintl 相材料である $Ba_{1-x}K_xCd_2As_2$ を作製し、その熱電特性を調べた。その結果、 $x = 0.04$ において電力因子が $T = 762\text{ K}$ で 1.28 mW/mK^2 に到達することを発見した。また、格子熱伝導率は 600 K 以上で 1.0 W/mK 以下と極めて低い値を示し、熱電性能指数 ZT は 762 K で 0.81 を示す(図1)。As 系 122Zintl 相は元素の組み合わせ方が膨大にあり、今後の研究により ZT が上昇する余地は大いにある。

[1] H. Kunioka, K. Kihou, H. Nishiate, A. Yamamoto, H. Usui, K. Kuroki and C. H. Lee, Dalton Trans. 47, 16205 (2018).

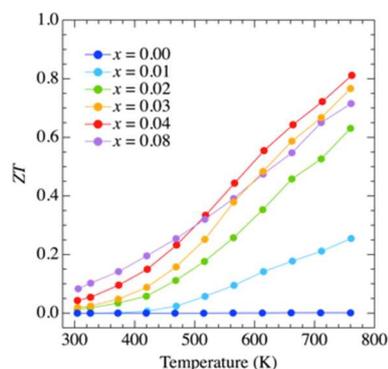


図1 $Ba_{1-x}K_xCd_2As_2$ の ZT の温度依存性[1]。

2) $CuCh_4$ (Ch =カルコゲン)の四面体配位を持つ物質における電力因子に関する統一的理解[2]

テトラヘドライト化合物や $BiOCuSe$ など、近年、 Cu のまわりにアニオンの四面体配位をもつ物質が熱電物質として注目される例が多い。本研究においては、これらの物質群に対する第一原理計算を基に、電力因子を決定する要素を統一的理解した。特に、図 2 に示すように、カルコゲン p 軌道による隠れた一次元ネットワークが存在することの重要性を指摘した。すなわち、銅の $3d$ 軌道を主成分とする価電子バンドにおいて、カルコゲン p 軌道との混成が、バンドの一次元的な性格を増強し、熱電性能に有利に働いていることを示した。

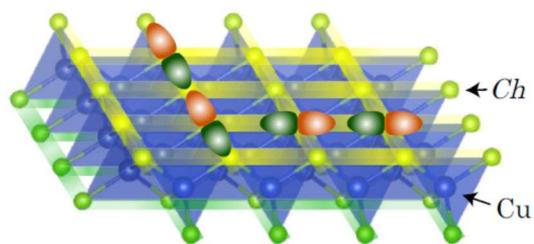


図 2 $CuCh_4$ ネットワークにおいて、カルコゲンの p 軌道が隠れた一次元的なネットワークを組んでいることを表す概念図。

[2] M. Ochi, H. Mori, D. Kato, H. Usui and K. Kuroki, Phys. Rev. Mater. **2**, 085401 (2018)

§ 2. 研究実施体制

(1) 産総研グループ

- ① 研究代表者: 李 哲虎 (産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門、主任研究員)
- ② 研究項目
 - ・平面配位を有する物質の結晶構造解析及びフォノンの研究

(2) 首都大グループ

- ① 研究代表者: 水口 佳一 (首都大学東京 大学院理学研究科、准教授)
- ② 研究項目
 - ・擬平面5配位を有する物質の合成及び、熱電特性評価

(3) 九州大グループ

- ① 主たる共同研究者: 末國 晃一郎 (九州大学 大学院総合理工学研究院、准教授)
- ② 研究項目
 - ・平面3配位を有する物質の合成及び、熱電特性評価

(4) 大阪大学グループ

- ① 主たる共同研究者: 黒木 和彦 (大阪大学 大学院理学研究科、教授)
- ② 研究項目
 - ・平面配位を有する物質の電子状態及びフォノンの計算