

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

2020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

本課題研究では『電子熱伝導度と格子熱伝導度の“異常な挙動”を制御する指針を構築し、それを利用して革新的熱利用材料を創製すること』を目的としている。2020年度の研究において以下の成果を得た。

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)

貴金属カルコゲナイドなどの材料群を用いて熱物性を精密測定すると共に、高性能熱利用素子の開発研究を行い、バイアス電圧の印加により200%以上の熱流変化を示すスイッチング素子、磁場により熱伝導度が60%減少する材料、370~410 Kの範囲において巨大な無次元性能指数($ZT=20$)を示す熱電材料の開発に成功した。[1]

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)

表面状態に特異なフェルミ面を有するトポロジカル物質において、熱電物性の解析が十分に可能である $0.2\sim 1.0\text{cm}^2$ の大きさの高品質なトポロジカル絶縁体単結晶(Bi-Sb-Te-Se:BSTS)薄膜を気相輸送成長法およびテープ剥離法を適用することで作製した。その特性を評価し、2次元物質の中では最大の熱電変換パワー因子($P=S^2\sigma$)の可能性を示すことを明らかにした。

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の多体性を考慮した厳密な熱流束の表式を導出し、熱伝導度計算における必要性を実証した。[2]Ag₂Sの剪断応力印可時の構造回復の機構を結晶の配向の観点から定量的に解明した。[3]

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)

Si-Ge[4]およびAg₂Sベース熱電材料[5]について、ボルツマン輸送理論により遷移金属添加が熱電特性に及ぼす影響を調査した。格子振動、不純物およびスピンゆらぎの効果を取り入れた電子状態計算KKR-CPA法により実行し、久保・グリーンウッド公式による電気伝導度の温度依存性計算を行った。[6]

§ 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を用いた Bi 系単結晶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

(3) 下條グループ

- ① 主たる共同研究者: 下條 冬樹 (熊本大学 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 准教授)
- ② 研究項目
 - ・ ナノ粒子からなるバルクトポロジカル材料の作製による表面状態の物性への寄与の解明
 - ・ 薄膜カルコゲナイド材料の作製と STS によるその評価

【代表的な原著論文情報】

- 1) “Mixed-phase effect of a high Seebeck coefficient and low electrical resistivity in Ag_2S ”, G. Kim, D. Byeon, S. Singh, K. Hirata, S. Choi, M. Matsunami and T. Takeuchi, *Journal of Physics D: Applied Physics* **54** (11), 115503.
- 2) “Computational and training requirements for interatomic potential based on artificial neural network for estimating low thermal conductivity of silver chalcogenides”, K. Shimamura, Y. Takeshita, S. Fukushima, A. Koura, and F. Shimojo, *J. Chem. Phys.* **153**, 234301 (2020).
- 3) “Structure recovering in semiconductor Ag_2S under shear strain: An origin of its excellent ductility at room temperature”, M. Misawa, H. Hokyo, S. Fukushima, A. Koura, F. Shimojo, R. K. Kalia, A. Nakano, and P. Vashishta, *Sci. Adv.* 投稿中
- 4) “First-principles calculation of electronic density of states and Seebeck coefficient in transition-metal-doped Si-Ge alloys”, A. Masago, H. Shinya, T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, *Solid State Communications* **323**, 114115 (2021).
- 5) “Intrinsic defect formation and the effect of transition metal doping on transport properties in a ductile thermoelectric material $\alpha\text{-Ag}_2\text{S}$: a first-principles study”, H. N. Nam, R. Yamad, H. Okumura, T. Q. Nguyen, K. Suzuki, H. Shinya, A. Masago, T. Fukushima and K. Sato, *Physical Chemistry and Chemical Physics*, **23** (16) 9773 (2021).
- 6) “First-principles calculations of finite temperature electronic structures and transport properties of Heusler alloy Co_2MnSi ”, H. Shinya, S. Kou, T. Fukushima A. Masago, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, and H. Akai, *Applied Physics Letters* **117** (4), 042402 (2020).