

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

2022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

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)

佐藤 和則 (大阪大学 大学院工学研究科 准教授)

下條 冬樹 (熊本大学 大学院先端科学研究部 教授)

陳 勇 (東北大学 材料科学高等研究所 主任研究者)

## 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。2022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、相変態の潜熱に関する熱ポンピング機構により2.6倍の熱流スイッチングが生じることを明らかにし、3倍を超える整流効果を示す全固体熱ダイオード、室温付近において $ZT > 3.5$ を示す薄膜熱電材料の開発に成功した。

### 異常巨大ゼーベック効果を示す物質群の機構解明(Yong ChenG)

異常巨大ゼーベック効果を示す事を報告してきた物質 $\text{Cu}_2\text{S}$ および両極性真性半導体ルブレン単結晶に対して、その発現機構を解明する研究を遂行した。相転移の関係して観測される $\text{Cu}_2\text{Se}$ の異常巨大ゼーベック効果に関しては、相転移の際に生じるエントロピー変化が深く関係し、両極性ルブレン単結晶で観測される巨大ゼーベック効果は、不純物バンドとバンド端に広がる裾バンドによる、キャリア濃度とケミカルポテンシャルの影響が大きな要因である事を示した。

### 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)

機械学習原子間ポテンシャルを作成する際に熱流束の正規化を考慮することで、熱伝導度の原子種による寄与の定量化と厳密なスペクトル解析を可能とし、その有用性を実証した。機械学習原子間ポテンシャルを用いて数十万原子の大規模な $\text{Ag}_2\text{S}$ の剪断応力シミュレーションを実行し、構造回復機構のサイズ依存性を解明した。

### 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)

$\text{Ag}$ ,  $\text{Cu}$ カルコゲナイド系熱電材料について、合金化が熱電特性に及ぼす影響をボルツマン輸送理論により調査し、新規熱電材料の候補について検討した。久保・グリーンウッド公式により $\text{CoSi}$ や磁性半導体の電気伝導度を計算し、ボルツマン輸送理論の結果と比較して散乱機構についての議論を行った。

### 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)

原子レベルで緻密制御された高品質薄膜(モデル薄膜)を作製し、その先端分光を行った。これにより、異常熱物性を示す物質群の原子配列、電子構造に関する精密情報を取得し、異常電子熱伝導度の理論的解明と熱輸送特性を制御する材料設計指針を構築した。

【代表的な原著論文情報】

- 1) “Magneto-thermal conductivity effect and enhanced thermoelectric figure of merit in  $\text{Ag}_2\text{Te}$ ”. K. Hirata, K. Kuga, M. Matsunami, M. Zhu, J. P. Heremans, T. Takeuchi. *AIP Advances* **13**(1) 015016 (2023).
- 2) “Gate-Tunable Anomalous Hall Effect in Stacked van der Waals Ferromagnetic Insulator–Topological Insulator Heterostructures”. Andres E. Llacsahuanga Allcca, Xing-Chen Pan, Ireneusz Miotkowski, Katsumi Tanigaki, Yong P. Chen, *Nano Letters*, **22**, 8130 (2022).
- 3) “Defect-free and crystallinity-preserving ductile deformation in semiconducting  $\text{Ag}_2\text{S}$ ”, M. Misawa, H. Hokyō, S. Fukushima, K. Shimamura, A. Koura, F. Shimojo, R. K. Kalia, A. Nakano, and P. Vashishta, *Sci. Rep.* **12**, 19458 (2022).
- 4) “A first-principles study on the electrical conductivity of  $\text{Ag}_2\text{S}_{1-x}\text{Se}_x$  ( $x = 0, 0.25, 0.5$ ): Electron-phonon coupling”. H. N. Nam, K. Suzuki, A. Masago, T. Q. Nguen, H. Shinya, T. Fukushima, K. Sato, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 143903 (2022).
- 5) “Large antiferromagnetic fluctuation enhancement of the thermopower at a critical doping in magnetic semimetal  $\text{Cr}_{1+\delta}\text{Te}_2$ ”. A. Mohamed, Y. Fujisawa, T. Onishi, M. Pardo-Almanza, M. Couillard, K. Harada, T. Takeuchi, and Y. Okada, *Phys. Rev. B* **106**, 155112 (2022).