

CNT 系熱電変換材料の開発：オニウム塩によるフェルミ準位の精密制御

Development of Thermoelectric Materials Comprising CNT: Fermi Level Control of CNT by Onium Salts

富士フイルム (株) °杉浦 寛記, 金澤 吉憲, 林 直之、野村 公篤

Fujifilm, °Hiroki Sugiura, Yoshinori Kanazawa, Naoyuki Hayashi, Kimiatsu Nomura

E-mail: hiroki.sugiura@fujifilm.com

緒言：カーボンナノチューブ (CNT) は大量かつ安価な製造が可能であり、また軽量で柔軟性を有し、印刷適性も付与できることから、実用面で高いポテンシャルを有する熱電変換材料である。但し、CNT はビスマステルルなどの無機材料と比べ熱電変換性能が低く、性能向上が課題である。熱電性能の指標である出力因子 (PF) は導電率 (σ) $\times$ ゼーベック係数 (S)² で表わされるが、一般に σ と S はキャリア密度に対してトレードオフとなる。 σ と S を同時に向上させる手法としてイオン液体を混合する方法が知られており、メカニズムは諸説提唱されている[1,2]。我々は種々のイオン性化合物について検討した結果、イオン液体以外のオニウム塩や無機塩でも σ と S が同時に向上することを見出し、その機構が CNT のフェルミ準位制御[3]であるという知見を得たので報告する。

実験方法：CNT のバッキーペーパーを種々のオニウム塩の溶液に浸漬し、乾燥後、熱電特性測定装置 (オザワ科学社製、MODEL RZ2001i) を用いて σ と S を測定した。フェルミ準位の値は大気中光電子分光装置 (理研計器社製 AC-2) により得たイオン化ポテンシャルの値を用いた。

結果と考察：種々のオニウム塩を検討した結果、 S が pn 極性反転を伴い大きく変化することからオニウム塩は CNT との電荷の授受、即ちフェルミ準位を制御していると考えた。フェルミ準位に対し熱電性能をプロットすると (図 1)、無添加の 4.68eV を境に S の絶対値と σ が同時に向上し、その後、 S の低下と σ が向上する傾向が見られた。立体的に小さいカチオンのオニウム塩で特に高い S (約 70 μ VK⁻¹) が得られ、PF は無添加に対し約 7 倍となった。さらに膜密度向上施策により S を維持したまま σ を向上でき、PF は 500 μ Wm⁻¹K⁻² に到達した。

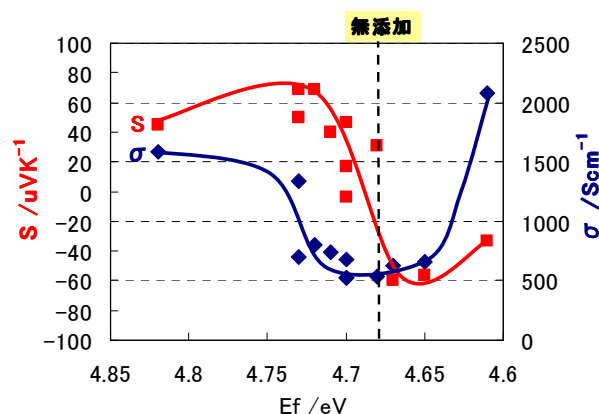


図 1. オニウム塩処理した CNT のフェルミ準位と熱電性能の関係

[1] 中野 元博 他, 第 49 回 FNTG 総合シンポジウム, 2015.9.

[2] S. Horike, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 03DC01 (2016).

[3] K. Yanagi et al., *Nano Lett.* **14**, 6437 (2014).

謝辞：この成果の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務の結果得られたものです。