有機低分子単結晶における巨大ゼーベック効果

Giant Seebeck effect in organic single crystals of small molecular weight

O竹内 高伸¹、井上 智史¹、阿部 竜¹、小島 広孝¹、鄭 敏喆¹、辨天 宏明¹、
田村 悠人¹、山田 容子¹、菊池 満²、伊澤 誠一郎²、平本 昌宏²、中村 雅一¹ 奈良先端大物質¹ 分子研²

(1.NAIST, 2.IMS) °T. Takeuchi¹, S. Inoue¹, R. Abe¹, H. Kojima¹, M.-C. Jung¹, H. Benten¹, Y. Tamura¹, H. Yamada¹, M. Kikuchi², S. Izawa², M. Hiramoto², and M. Nakamura¹ E-mail: takeuchi.takanobu.tk5@ms.naist.jp

身の回りの生活に存在している膨大な量の熱から電気エネルギーを生み出す熱電変換素子の普及が期待されている。このような熱はエネルギー密度が低いため、効率よく回収するための低コストで大面積なフレキシブル有機熱電変換素子が望まれている。熱電変換材料の性能は無次元性能指数 ZT で表され、実用化の目安とされる ZT > 1 を満たすためには従来の熱電理論に縛られない新奇熱電機構による有機熱電材料の探索、開発が必要である。これに対して、我々のグループでは一部の高純度な有機半導体材料において、0.1 V/K 以上の巨大なゼーベック係数が現れることを見出し、この特異な現象について研究を続けている「ロ」。これまでに、ベンゾポルフィリン(BP)、ペンタセン(Pn)などの低分子系材料で巨大ゼーベック効果が一般的に発現することを報告してきたが、その発現条件や物理的機構は未だ明らかになっていない。これまでは薄膜試料を主な対象として材料探索を行ってきたが、構造欠陥や分子配向の不均一性、結晶粒界などの影響が巨大ゼーベック効果の発現に寄与している可能性が疑われた。そこで、発現機構解明のために、より構造欠陥の少ない理想的な構造を有する単結晶の熱電物性の測定が望まれる。本研究では、気相成長法(PVT 法)により作製した種々の有機単結晶の熱電物性について報告する。

材料として BP、PDI、Rubrene を選択し、ガラス 基板上に配線した金箔電極に橋渡しするように固 定し、熱電物性を測定した(図1)。各単結晶におけ るゼーベック係数、導電率の温度依存性と先行研 究で得られている BP、PDI 薄膜での結果を図 2 に 示す。BP、PDI、Rubrene では単結晶においても巨 大ゼーベック効果が観測されたことから、比較的 構造欠陥の少ない単結晶においても巨大ゼーベッ ク効果が発現し、結晶粒界などは発現要因ではな いことが示唆された。また先行研究において、分 子配向の影響が示唆されている^[2]。すなわちπスタ ック方向と熱流方向とが一致している BP 薄膜や Pn 薄膜の材料では巨大ゼーベック効果が発現し、 両者が直交している PDI 薄膜では巨大ゼーベック 効果が発現しない。今回、PDI 単結晶で巨大ゼー ベック効果が確認されたことから、分子配向を制 御し、πスタック方向と熱流方向を揃えることで、 巨大ゼーベック効果が発現したと考えられる。

[1] 中村: 応用物理 **82**, 954 (2013).; [2] 藤原他: 第76 回春応物, p.11-113 (2015.9.13) 13p-PB8-16.

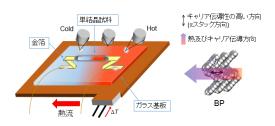


図 1. 単結晶測定系

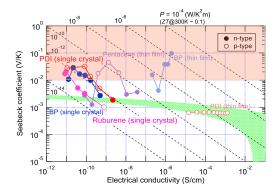


図 2. 本研究による有機単結晶と先行研究 による薄膜のゼーベック係数と導電率^[2] (赤色領域は巨大ゼーベック係数の領域、 緑色領域は従来の非縮退半導体における 熱電理論に従う領域を表す)