ナノ構造体におけるフォノン緩和過程と微小熱電発電デバイスへの応用

Phonon relaxation process in nanostructures and application to micro-scale thermoelectric generation devices

北陸先端大，小矢野幹夫，浅井渉，宮田全展，Pham Xuan Thi

JAIST, Mikio Koyano, Wataru Asai, Masanobu Miyata, and Pham Xuan Thi

E-mail: koyano@jaist.ac.jp

$(Bi,Sb)_2(Te,Se)_3$ に代表される熱電材料は, 大きな熱電能と高い電気伝導率および低い熱伝導率を持つ機能性材料であり，古くからペルチェ冷却デバイスとして実用化されてきた．近年では，ペルチェ効果の逆過程であるゼーベック効果を利用した温度差発電デバイスの材料として注目を集めており，新材料開発やデバイス応用など様々な研究が行われている．この熱電材料を，微少熱を“収穫”するエネルギーハーベスターとして応用する場合，熱電材料素子自体の微小化が必要となってくる．このような微小エネルギー変換素子の開発を目指して，我々はマイクロからナノメートルオーダーの材料における熱電物性測定を試みた．

微小熱電デバイス作製のモデル材料として，層状化合物のひとつ二硫化モリブデン MoS_2 を選んだ．まず，正孔キャリア注入のため，Mo サイトを一部 Nb で置換した $Mo_{1-x}Nb_xS_2$ 単結晶を，ヨウ素を輸送剤として用いた封管式化学気相法によって合成した．この試料を機械的剥離により厚さ数ナノメートルに成形し，シリコン基板上に形成した四端子パターン上に移送した．この基板上には独自に設計されたマイクロヒーターと温度計も設置されており，電気抵抗率と熱電能を同時に測定することが可能である．300 K から 450 K までの熱電能と電気抵抗率の測定から，キャリア輸送のメカニズムについて詳細な解析を行い，無秩序ポテンシャルによるキャリアの弱局在によって電気抵抗率が増大すること, Nb と S の混成軌道からなる準位にフェルミ準位がピンニングされることなど，微小デバイスを作製する上で必要不可欠な情報を見出した．このような電子輸送現象の実験に加えて，レーザーラマン分光法を用いた局所温度測定より，層状化合物である MoS_2 の格子系におけるエネルギー緩和過程に関する研究も進行中である．

これらの実験的研究に加えて, 第一原理電子状態計算を活用した新規熱電材料探索も, 熱電変換技術の実用化のために重要である．Figure 1 は，既知の構造を持つ硫化物とその置換系あわせて 800 種類に対して, キャリア散乱の緩和時間を τ=5 fs として計算した無次元性能指数 ZT を，その熱電能 S に対してプロットしたものである．n 型，p 型とも，$|S|$=172 μV/K 付近で極大値を示しており，熱電能には実用上の最適値が存在することがわかる．

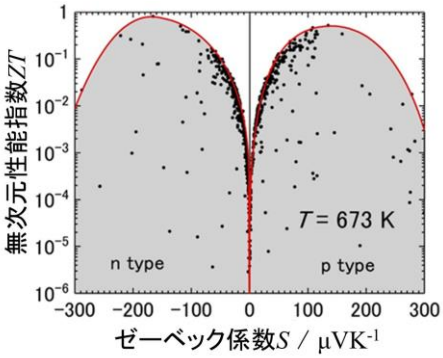

Fig. 1 Expected figure of merit ZT for various sulfide materials using DFT calculation are plotted against the Seebeck coefficient S.

講演では，これらの実験的・理論的な成果を踏まえ，熱電材料を活用したエネルギー変換デバイスの研究指針について述べる．

© 2019年 応用物理学会