

窒素ドーピングによるカーボンナノチューブ熱電特性の最適化

Theoretical Study on Optimal Thermoelectrical Properties of Nitrogen-Doped Carbon Nanotubes

東理大理¹, 東理大総研院 W-FST センター²○(P) 松原 愛帆¹, 笹岡 健二², 山本 貴博^{1,2}Fac. of Sci., Tokyo Univ. of Sci.¹, RIST, Tokyo Univ. of Sci.²○Manaho Matsubara¹, Kenji Sasaoka², Takahiro Yamamoto^{1,2}

E-mail: mmatsubara@rs.tus.ac.jp

カーボンナノチューブ(CNT)は高い熱電特性を示し、さらに、軽量かつフレキシブルな機械的特性を有することから、近年、フレキシブルな熱電材料への応用が期待されている[1]。CNTのみを用いた熱電素子の作製では、p型、n型半導体CNTが必要となるが、p型半導体CNTの候補として窒素ドーピングCNTが挙げられる。直径0.78nmの窒素ドーピングCNTについては、その熱電特性（パワーファクター）が、室温付近において、窒素ドーピング量の減少に伴い増加することが理論的に予測されている[2]。これは、不純物準位から伝導帯へ熱励起した電子の移動度が、不純物ドーピング量の減少に伴い増加したためである。一方、価電子帯内に熱励起したホールの影響は、室温付近において十分小さいため無視している。

そこで本研究では、熱励起したホールの影響がより顕著になる、バンドギャップ E_g が小さい、すなわち直径が大きいCNTに着目し、価電子帯を考慮した計算を行なった。具体的には、様々な直径の窒素ドーピングCNT（直径1.6nm～2.3nm, $E_g=0.50\text{eV}\sim0.34\text{eV}$ ）に着目し、その熱電特性（電気伝導率 L_{11} , 熱電伝導率 L_{12} , ゼーベック係数 S , パワーファクター PF ）を、久保-ラッティンジャーによる熱電線形応答理論と温度グリーン関数法[2-4]を組み合わせることで理論的に調査した[5]。その結果、それぞれのCNTにおいて、温度（200K, 300K, 400K）ごとに PF を最大化する最適な窒素ドーピング量 c_{opt} が存在することが明らかとなった。これは、ある程度以上に窒素ドーピング量を小さくすると、不純物準位から伝導帯内へ熱励起する電子数が減少し、価電子帯に熱励起したホールの影響を無視できなくなるためである。よって、最適な不純物ドーピング量 c_{opt} はCNTの直径（すなわち E_g ）や温度に強く依存し、 E_g が小さくなるほど、もしくは、温度が上昇するほど、熱励起するホール数は増加するため c_{opt} も増加することを定量的に示した。

- 1) Y. Nakai *et al*, Appl. Phys. Express, **7**, 025103 (2014).
- 2) T. Yamamoto and H. Fukuyama: J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 024707 (2018).
- 3) T. Yamamoto and H. Fukuyama: J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 114710 (2018).
- 4) M. Ogata and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 074703 (2019).
- 5) M. Matsubara, K. Sasaoka, T. Yamamoto and H. Fukuyama (submitted).