

窒素ドーピングカーボンナノチューブの熱電特性の最適化

○松原愛帆^{1*}, 笹岡健二², 山本貴博^{1,2}, 福山秀敏³¹東京理科大学理学部, ²東京理科大学総合研究院, ³東京理科大学

Theoretical study on optimization of thermoelectric properties of nitrogen-doped carbon nanotubes

○Manaho Matsubara^{1*}, Kenji Sasaoka¹, Takahiro Yamamoto¹, and Hidetoshi Fukuyama¹¹Tokyo University of Science

1. はじめに

カーボンナノチューブ(CNT)は、高い熱電出力が期待される1次元材料であり、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、ウェアラブルな熱電デバイスへの応用が期待される。CNTのみからなる熱電素子を製作するためには、p型とn型の半導体CNTが必要である。本研究では、n型半導体CNTの候補である窒素ドーピング半導体CNTに着目し、その熱電特性の温度依存性を明らかにするとともに、様々な直径のCNTの熱電特性、特にパワーファクター(PF)を最大化する窒素ドーピング量を理論的に予測した。

2. 計算手法

半導体CNTの伝導バンド(+)と価電子バンド(-)の頂点近傍のエネルギー分散関係(ϵ^\pm)は、有効質量(m^*)、波数(k)、バンドギャップ(E_g)を用いて

$$\epsilon^\pm(k) = \pm \left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} + \frac{E_g}{2} \right)$$

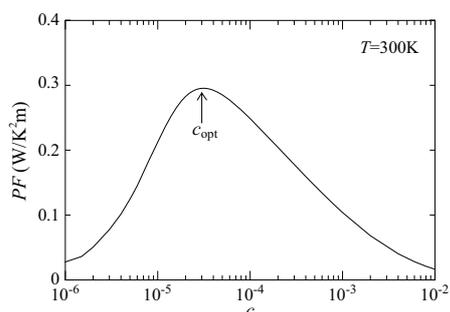
と記述した。

また、不純物をドーピングした半導体CNTという「乱れた系」の熱電特性を正確に予測するために、久保-ラティンジャーの熱電線形応答理論と温度グリーン関数法を組み合わせた理論手法を用い [1-3]、ランダムにドーピングされた窒素原子による電子散乱の記述には自己無撞着T行列近似を用いた [4]。

3. 結果と考察

本研究では、様々な環境温度に対するCNTのPFを最大化する最適な窒素ドーピング量 c (=単位胞あたりの窒素原子量)を理論的に明らかにした。例えば Fig.1 に示すように、(20,0)半導体CNT(直径約16Å)のPFは、300Kにおいて $c_{opt} = 3.1 \times 10^{-5}$ で最大となる。

このPF($= L_{11} S^2$)の振る舞いは、化学ポテンシャル(μ)と電気伝導率(L_{11})、そしてゼーベック係数(S)の c 依存性から理解することができる。例えば、 $c = 10^{-2}$ では、 μ は不純物バンドの下に位置し c の減少に伴い下降す

Fig. 1. 300KにおけるのPFの c 依存性。

る。これは、 c の減少により正味のキャリア数が減少したためであり、この μ の減少により S は増加する。また、 c の減少により散乱が抑制されるため L_{11} も増加し、その結果PFは増加する。さらに c が減少すると、 μ はバンドギャップ中央へと漸近する。この領域では価電子帯内のホールの熱励起が顕著となり L_{11} は増加する。一方で S は、熱励起したホールと電子の寄与が互いに相殺するため急激に減少する。その結果PFは減少に転じる。以上より、我々は使用する温度に応じてPFを最大化する最適な不純物ドーピング量(c_{opt})が存在することを定量的かつ定性的に明らかにした。また、様々な温度に対して、 c_{opt} とPFの最大値を示した[4]。

さらに、直径の異なるCNTについても網羅的な調査を行った。その結果、直径の減少に伴い c_{opt} は減少し、PFの最大値は指数関数的に増加することが明らかとなった。これは、直径の減少、すなわち E_g の増加に伴い、熱励起するホール数が抑制されるためである。

文 献

- 1) T. Yamamoto and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn., 87, 024707 (2018).
- 2) T. Yamamoto and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn., 87, 114710 (2018).
- 3) M. Ogata and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn., 88, 074703 (2019).
- 4) M. Matsubara, K. Sasaoka, et al., J. Phys. Soc. Jpn., 90, 044702 (2021).

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