

カーボンナノチューブ薄膜の特異な熱電物性

Thermoelectric Properties of Carbon Nanotube Thin Films

山本貴博、高田幸宏

Takahiro Yamamoto and Yukihiro Takada

東京理科大学工学部教養／大学院工学系研究科電気工学専攻

Department of Liberal Arts & Department of Electrical Engineering,
Tokyo University of Science, Katsushika, Tokyo 125-8585

排熱から有効な電気エネルギーを獲得する熱電変換物質が再注目されている。現状の熱電変換物質の多くは、ビスマス・テルライド (Bi_2Te_3) に代表されるような重元素からなる化合物半導体であり、耐熱性や耐酸化性に乏しく毒性や環境汚染の観点から相応しくない。また、 Bi_2Te_3 などは層状物質であるために機械的強度が弱いために、その応用は特殊な範囲に限られている。このような現状を踏まえ、広範に応用可能な熱電変換物質として

- ① ユビキタス元素からなる物質
- ② 強靱かつ柔軟な機械的性質
- ③ 高出力かつ高効率な熱電発電

を満たす物質開発が望まれる。その実現のためには、実験と足並みを揃えた計算物質科学による物質デザインと物性評価が不可欠である。

上記項目のうち①と②を満たす物質として『カーボンナノチューブ (CNT)』が挙げられる。もし、CNTが項目③を満たすならば、CNTは広範に応用可能な熱電変換物質の有力候補となり得る。最近、高純度の半導体単層CNT (S-SWNT) によって精製された薄膜 (S-SWNT 薄膜) が実現され[1]、S-SWNT 薄膜が室温付近で大きな熱起電力 (ゼーベック係数) を示すことが実験的に明らかとなった [1]。また、S-SWNT 薄膜をアニーリング (し、薄膜に吸着していた酸素が脱離) すると、そのゼーベック係数の温度依存性が顕著に変化し、特に低温では、ゼーベック係数の符号が変わるといった興味深い振舞いが見出された [2]。

本研究では、上述の S-SWNT 薄膜の特異な熱電物性のメカニズムを明らかにし、S-SWNT 薄膜の熱電出力と熱電変換効率のさらなる向上の可能性を探ることを目的とする。シミュレーションに用いた方法は、非平衡グリーン関数法と密度汎関数法 (NEGF+DFT 法) である。本シミュレーションにより、チューブ同士の接触部での共鳴トンネルに起因して、S-SWNT 薄膜は孤立 SWNT よりも遥かに大きなゼーベック係数を示し得ることが明らかとなった。また、薄膜のキャリア量の変化を変化させるとことで共鳴-非共鳴のクロスオーバーが起こり、その結果として、ゼーベック係数の温度依存性が顕著に変化する。これは、アニーリング (による酸素脱離) によってゼーベック係数の温度依存性が顕著に変化したことに対応すると考えられる。また、低温でのゼーベック係数の符号の変化についても、チューブ接触部での共鳴トンネル現象の帰結として理解することができるが、その詳細については講演で議論する。

[1] Liu *et al.*, Nat. Commun., **2**, 309 (2011).

[2] 首都大学東京・真庭グループ (private commun.)