

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		電子構造制御に基づく環境低負荷・低価格の高性能熱電変換材料の開発			
研究テーマ (欧文) AZ		Development of environmental friendly and low cost thermoelectric materials based on electronic and band structure engineering			
研究氏 代 表 名 者	カナ CC	姓)タカギワ	名)ヨシキ	研究期間 B	2012 ~ 2014年
	漢字 CB	高際	良樹	報告年度 YR	2014年
	ローマ字 CZ	TAKAGIWA	YOSHIKI	研究機関名	東京大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻・助教			
概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)					
<p>近年、熱エネルギーから電気エネルギーへと直接変換できる環境に優しい発電方法として熱電発電の実用化が期待されている。これまで、廃熱として大気中に逃げてきた熱エネルギーを少しでも回収し、「電気」という形で産業界や我々の生活に有効活用することは省エネルギー化社会に対して貢献できる。熱電発電を実用化に結びつける為に、高い変換効率を有し、かつ低価格のバルク熱電変換材料の開発を、理論計算を併用した電子構造制御に基づき行うことを目的とした。</p> <p>研究対象物質として、アルカリまたはアルカリ土類金属と 13~16 族の典型元素からなる Zintl 化合物及び鉛カルコゲナイドを選択した。前者の Zintl 化合物に関しては、Sr-Al-Sb 系に着目し、<math>Sr_3AlSb_3</math> 及び <math>Sr_5Al_2Sb_6</math> のドーピング効果を実験的に明らかにし、バンド計算及びシングルパラボリックバンドモデルを用いた解釈を行った。両者の特徴は、1 eV 以下のバンドギャップを形成し、<math>300 \mu V/K</math> を越える大きな Seebeck 係数を有し、かつ、室温で <math>1 W/m-K</math> というガラス並みに低い熱伝導率を示す点である。Zn-Al 置換によるホールドープ効果の解析結果から、更なるキャリア注入により、無次元熱電性能指数 <math>zT</math> が向上する可能性が明らかになった。しかし現状では、これらの材料の <math>zT</math> は 0.1 程度であり、より有効ドープ量の多いドーパントの探索が必要であろう。</p> <p>一方、Pb カルコゲナイドに関しては、第一原理計算による電子状態計算を行った。これらの材料系における <math>zT</math> 向上の為に、ドーパントが電子構造に与える影響を調べる事が重要である。KKR-CPA 法を用いて、種々のドーパントが電子構造に与える影響を調べた結果、リジッドバンド的な変化を示すものと、電子構造に変調を与えるものとを明らかにした。</p>					
キーワード FA	熱電変換	Zintl 化合物	鉛カルコゲナイド	バンド計算	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Validity of rigid band approximation of PbTe thermoelectric materials							
	著者名 <sup>GA</sup>	Y. Takagiwa <i>et al.</i>	雑誌名 <sup>GC</sup>	APL Materials (Feature Article)					
	ページ <sup>GF</sup>	011101-1～-5	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	3	巻号 <sup>GD</sup>	1
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Thermoelectric Properties and Electronic Structure of the Zintl-Phase Sr <sub>3</sub> AlSb <sub>3</sub>							
	著者名 <sup>GA</sup>	A. Zevalkink and Y. Takagiwa <i>et al.</i>	雑誌名 <sup>GC</sup>	ChemSusChem (Editor's choice)					
	ページ <sup>GF</sup>	2316 ~ 2321	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	3	巻号 <sup>GD</sup>	6
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Tuning bands of PbSe for better thermoelectric efficiency							
	著者名 <sup>GA</sup>	H. Wang and Y. Takagiwa <i>et al.</i>	雑誌名 <sup>GC</sup>	Energy & Environmental Science					
	ページ <sup>GF</sup>	804 ~ 811	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	4	巻号 <sup>GD</sup>	7
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Thermoelectric properties and electronic structure of the Zintl phase Sr <sub>5</sub> Al <sub>2</sub> Sb <sub>6</sub>							
	著者名 <sup>GA</sup>	A. Zevalkink and Y. Takagiwa <i>et al.</i>	雑誌名 <sup>GC</sup>	Dalton Transactions					
	ページ <sup>GF</sup>	4720 ~ 4725	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	4	巻号 <sup>GD</sup>	43
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Thermoelectric properties of the Yb <sub>9</sub> Mn <sub>4.2-x</sub> Zn <sub>x</sub> Sb <sub>9</sub> solid solution							
	著者名 <sup>GA</sup>	S. Ohno and Y. Takagiwa <i>et al.</i>	雑誌名 <sup>GC</sup>	Journal of Materials Chemistry A					
	ページ <sup>GF</sup>	印刷中	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	4	巻号 <sup>GD</sup>	印刷中

#### 欧文概要 EZ

Thermoelectric materials, which can directly convert from heat energy into electrical energy, are expected to be widely used as an environmentally friendly power generation technique. It is beneficial to utilize practically waste heat in industrial circles and our daily life. In this research project, we focused attention on a development of new thermoelectric materials with high efficiency and low cost, based on the band structure engineering using theoretical calculation.

The targeting materials are ternary Zintl compounds, which consist of alkaline or alkaline earth metals, group-13 to 16 element and Sb, and lead chalcogenides. As for the Zintl compounds, we selected Sr<sub>3</sub>AlSb<sub>3</sub> and Sr<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>Sb<sub>6</sub> as starting materials and discussed the doping effect on the thermoelectric properties using band structure calculation and single parabolic band model. These materials have bandgaps below 1.0 eV, large Seebeck coefficients over 300 μV/K, and glass-like low thermal conductivities which are close to 1 W/m-K at ambient temperature. From the results of hole-doping through Zn substitution for Al sites, the dimensionless figure of merit  $zT$  can be enhanced by further carrier doping. However,  $zT$  values are approximately 0.10 for these materials by Zn doping. Therefore, another suitable dopant should be required for further carrier doping.

As for the lead chalcogenides, we performed band structure calculation to probe the dopants effects on the electronic structure at the band edge, and clarified its modification to control the properties.