

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：12601
 研究種目：基盤研究(B) (一般)
 研究期間：2019～2021
 課題番号：19H02414
 研究課題名(和文) 半導体準結晶による高性能熱電材料、高温超伝導材料、新規トポロジカル絶縁体の開発

 研究課題名(英文) Development of high-performance thermoelectric material, high-critical-temperature superconductor and new topological insulator using semiconducting quasicrystal

 研究代表者
 木村 薫 (KIMURA, KAORU)

 東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授

 研究者番号：30169924
 交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：Al-遷移金属系では、まず1/0半導体近似結晶への他元素置換によるキャリア密度の制御に成功し、p型とn型で、無次元性能指数0.16と0.25をそれぞれ達成した。準結晶・近似結晶系において初めての熱電モジュール試作に進める成果である。次に1/1と2/1近似結晶の第一原理計算から半導体となる候補系を選定し、2/1近似結晶と準結晶で縮退半導体的な熱電物性を発見した。2/1近似結晶の単位胞当たり2～3個のホールドーピングで半導体の実現を意味している。B系では、第一原理計算から純ボロンの菱面体晶型1/1近似結晶と準結晶の準安定相実現を示し、過冷却液体急冷により既知の準安定相と共に未知相の作製に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
 固体物理学の教科書では、結晶構造の分類の次に、金属、半導体、絶縁体の分類が説明される。準結晶は100種類以上で見つかり、結晶、アモルファスと並ぶ固体構造の概念として確立したが、金属しか存在しない。「半導体準結晶」が存在するかどうかは、固体物理学の基本的な問題の一つとなっている。本研究の成果は、アルミ-遷移金属系とボロン系の両者において、「半導体準結晶」実現の一手手前に迫っている。さらに、アルミ-遷移金属系ですでに実現した「半導体近似結晶」におけるキャリア密度制御に成功し、これを用いた準結晶・近似結晶系で初めての熱電モジュール実現にも迫る成果を上げた。

研究成果の概要(英文)：In the Al-transition metal system, we succeeded in controlling the carrier density by substituting other elements for 1/0 semiconducting approximant, and achieved dimensionless figure of merit of 0.16 and 0.25 for p-type and n-type, respectively. This is the result of proceeding to the first trial of a thermoelectric module in a quasicrystal/approximant system. Next, we selected candidate systems for semiconductors from the first-principles calculations of 1/1 and 2/1 approximant, and discovered degenerate semiconductor-like thermoelectric properties in 2/1 approximant and quasicrystal. It means the realization of a semiconductor with 2 to 3 hole dopings per unit cell of 2/1 approximant. In the B system, we showed the realization of a metastable phase of pure boron -rhombohedral type 1/1 approximant and quasicrystal from the first-principles calculation, and succeeded in producing an unknown phase together with a known metastable phase by supercooled liquid quenching.

研究分野：材料物性学

キーワード：準結晶 近似結晶 キャリア密度制御 熱電変換材料 第一原理計算 バンドエンジニアリング 静電浮遊法 過冷却液体急冷

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

本研究代表者は、1984年に「準結晶」が最初に発見された直後から、「準結晶」の電気物性を世界に先駆けて研究し、Al系正20面体「準結晶」が金属としては異常な高電気抵抗率を持つことと、その原因が正20面体の高い対称性に起因するフェルミ準位近傍の深い擬ギャップと非周期性に起因した弱局在効果であることを明らかにした[1]。その後、同じ正20面体クラスターを構造単位とするボロン系半導体結晶との比較研究から、両者を正20面体クラスター固体という同じ物質群として捉えて、統一的な描像を構築してきた[2]。「準結晶」は、1984年に最初の物質が発見され、その後の27年間に100種類以上の物質で見つかり、「結晶」、「アモルファス」と並ぶ固体構造の概念として確立し、2011年にノーベル化学賞に輝いた[3, 4]。しかし、これまで見つかった「準結晶」は、すべて「金属」である。半導体超格子やフォトニック構造として人工的な準周期構造が作られ、最近、「絶縁体」であるポリマーやメソポーラスシリカで準結晶が見つかったが、これらの準周期のスケールは原子スケールより1桁か2桁大きい。したがって、「半導体」や「絶縁体」の原子スケールの「準結晶」は見つかっておらず、これらが存在するかどうかは、固体物理学の基本的な問題の一つになっている[4]。一般に、「金属」から「半導体」、「絶縁体」に向かうためには、「金属結合」から「共有結合」や「イオン結合」の割合を増やす必要がある。

アルミ (Al) - 遷移金属 (TM) 系正20面体「準結晶」では、Alの正20面体クラスターと遷移金属の間の比較的強い「共有結合」と、正20面体の高い対称性によりヒュームロザリー機構が有効に働くことから、フェルミエネルギー (ε_F) が電子状態密度の深い擬ギャップの中にあり、一部のものは「半導体」に近づいている[3, 4, 5-7]。また、ボロン (B) は、強い「共有結合」を作り、正20面体や正五角形といった周期性と共存できない対称性を持った構造単位を持ち、一部のものは「準結晶」の近似結晶と考えられる。そして、正20面体を構造単位とするものは、すべて「半導体」である[8-10]。以上から、Al系とB系が、「半導体準結晶」の有力な候補と考えられる。

高性能が実現された熱電材料として、立方晶 PbTe のようなキャリア・ポケットの数が多い半導体がある。熱電材料の無次元熱電性能指数 ($ZT = \frac{S^2\sigma}{\kappa_e + \kappa_l}$) は、大きなゼーベック係数 (S)、

高い電気伝導率 (σ)、低い熱伝導率 ($\kappa_e + \kappa_l$ 、それぞれ電子と格子成分) を併せ持つ必要がある。通常、キャリア密度が大きくなると σ は増大するが S は減少する。これは、ポケットが一つの場合で、ポケット数が多いと、 S を大きく保ったまま、ポケット数に比例して σ を高くできる。PbTe では立方晶の3回軸方向に8個のポケットと、2回軸方向に12個のポケットが存在する[11]。これに対して、正20面体対称の半導体準結晶では、立方晶より対称性が高く、3回軸も2回軸も数は2.5倍になるため、パワーファクター ($S^2\sigma$) も2.5倍になり、結晶では実現不可能な高い熱電性能を実現できる可能性がある。

また、BCS機構の超伝導では、フェルミエネルギーでの状態密度 ($N(\varepsilon_F)$) が大きいほど転移温度 (T_c) が高くなる。正20面体の高い対称性は、電子状態の縮重度を高くし状態密度の高いエネルギー領域を生じさせる。同じKとCの組み合わせでも、対称性の低いグラファイト・インターカレーション化合物 (GIC) に比べて、対称性の高いドーブ・フラーレンでは、 $N(\varepsilon_F)$ が大きく T_c が高い。半導体準結晶へのキャリア・ドーブにより ε_F を、高い対称性により状態密度が大きくなった領域に調整すれば、やはり結晶では不可能な高い超伝導転移温度を実現できる可能性がある[12]。

さらに、結晶におけるトポロジカル絶縁体は対称性による分類が終わっているが、準結晶においては未開拓である。半導体準結晶におけるトポロジカル絶縁体にどのようなものがあり得るかは大変興味深い。

2. 研究の目的

上の背景から本研究の目的を、Al系およびB系で「半導体準結晶」を実現させることとした。

3. 研究の方法

A) Al系正20面体準結晶の創製

様々なAl系正20面体近似結晶のバンド構造を、第一原理計算プログラムによって計算して、半金属や半導体のバンド構造を持つものを探索する。M. Krajci等は、半導体のバンド構造を持つ幾つかの近似結晶を報告しているが、彼らの構造モデルは仮想的なものであり、実験的に実現されていない[13]。本研究では、実験的に得られている構造を基本にしてモデルを作る点が重要である。実験的に得られているAl-Cu-Ir 1/0近似結晶の構造[14]から、幾つかの構造的、化学的乱れを理想化したモデルに対して ε_F 付近のバンド構造と状態密度を計算した[7]。各バンドは、はっきりと伝導帯に属するか価電子帯に属するか分かれており、伝導帯の底が価電子帯の頂よりエネルギーが低く、半金属的なバンド構造を持っている。構造モデルのAlの一部をSiで置換したモデルに対して計算した。Si置換により、伝導帯の底が価電子帯の頂よりエネルギーが

高くなり、半導体のバンド構造に変化した。したがって、Al-Cu-Ir 1/0 近似結晶に計算で置換したと同程度の Si 置換を行えば、「半導体近似結晶」が得られる。さらに、Al-Cu-Ir 準結晶に Si 置換を行えば、「半導体準結晶」が得られる。この方針で、実際、Al-Ir1/0 近似結晶のバンド構造を第一原理計算で求め、ギャップをより大きくするために、Al の一部を Si で、Ir を Ru で置換することで、計算によりギャップが広がり、実験による半導体化に成功した [15]。

さらに多くの半導体バンド構造を持つ近似結晶の候補を探すため、Al-Cu-Ir 1/0 近似結晶の半金属的バンド構造と Al_2Ru や Ga_2Ru の狭ギャップ半導体バンド構造のバンドギャップ形成機構を明らかにした。具体的には、最局在ワニエ関数を用いて解析を行ったところ、価電子帯の形成について有力なモデルの構築に成功した [7]。価電子帯全てと伝導帯の一部に含まれるブロッホ関数から 179 個のワニエ関数を構築した。構築したワニエ関数を用いて再構成したバンドは、価電子帯については本来のバンド構造をほぼ完全に再現した。同様の解析をマッカイ型準結晶に対しても行い、マッカイ型準結晶形成の経験則である原子当たり平均価電子数 (e/a) = 1.8 の根拠を明らかにした [16]。さらに、これらの知見から、様々な半導体準結晶を実現する。

B) B 系正 20 面体準結晶の創製

B 系は Al 系正 20 面体準結晶と同じ正 20 面体クラスターを構造単位とした強い共有結合を持つ半導体であり、「半導体準結晶」の有力な候補である。我々は、B-Ti-Ru 系において、液体急冷により正 10 角形準結晶を発見している [10]。残念ながら、この準結晶の B の組成は約 40% と十分ではないため、半導体にはなっていないが、B 系における「半導体準結晶」への第一歩だと考えられる。純 B や少量他元素添加した B の液体急冷は、B の融点が 2000°C を超すため非常に難しいが、最近我々は、宇宙技術である静電浮遊法を用いることにより、無容器で B を融解することに成功した。そして、純 B の過冷却液体の粘性が、温度の低下と共に急激に増大すること [9]、その原因が正 20 面体クラスターの一部である 5 角錐クラスターの形成であることを明らかにした。また、コンプトン散乱測定により、液体 B 中には、共有結合が、液体 Si 中の約 2 割と異なり、約 7 割も残っていることも明らかにした [8]。この過冷却液体から急冷することにより、準安定相として「半導体準結晶」が得られることが期待できる。なぜなら、Al 系正 20 面体準結晶は、安定相としても得られているが、より多くの組成で、液体急冷による準安定相で得られた [3]。

4. 研究成果

A) Al 系正 20 面体準結晶の創製

A-1) Al-Ru-Si 半導体 1/0 近似結晶への Cu ドープによる熱電性能向上

我々は、Al-Ru-Si 1/0 近似結晶で、世界で初めて実験的に近似結晶で半導体を創製することに成功したが [15]、熱電特性に関しては、 S は 350 K で $200 \mu\text{V K}^{-1}$ 以上の大きな値を示したが、 σ は 350 K で 50 S cm^{-1} と低く、キャリア密度が最適化されていなかったため zT の最大値は 350 K において $zT=0.03$ と低い値であった (図 1(c) の黒丸)。そこで、 p 型熱電特性の最適化を目指し、系統的に Cu をドープした試料 $\text{Al}_{69-0.75x}\text{Si}_{7.5}\text{Cu}_x\text{Ru}_{23.5-0.25x}$ ($x=2, 4, 6, 8$) を作製し、熱電物性を測定した (図 1(a)-(b))。その結果、Cu ドープ量の増加に伴って σ の増加と S の減少がみられ、適切にホールドープされていることが確認できた。これにより zT の最大値は $x=4$ において 500 K

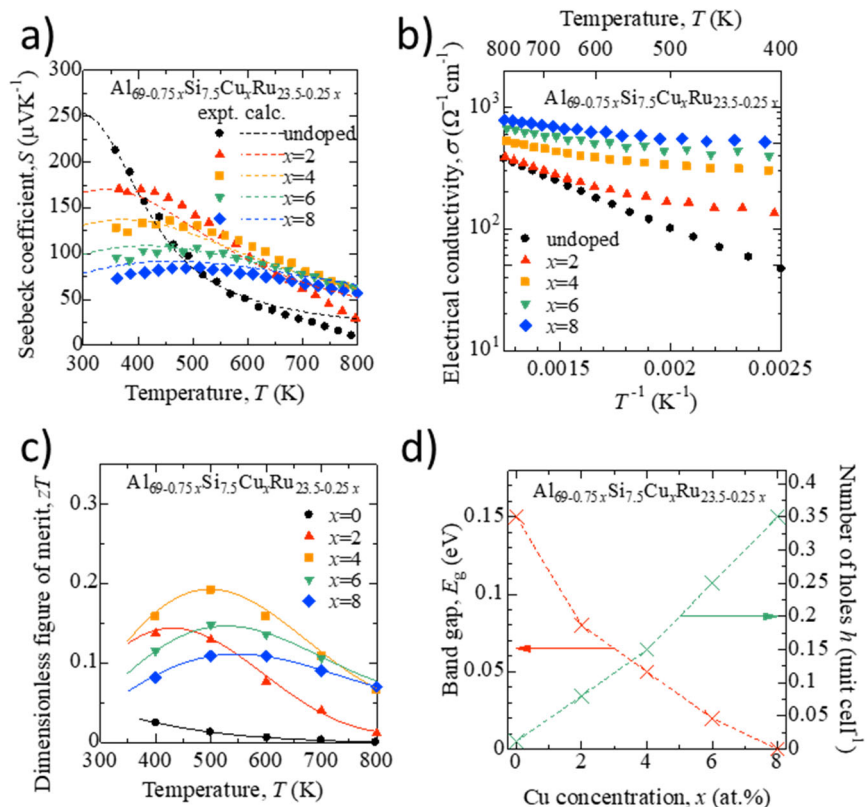


図 1 Al-Si-Ru 系半導体 1/0 近似結晶 $\text{Al}_{69-0.75x}\text{Si}_{7.5}\text{Cu}_x\text{Ru}_{23.5-0.25x}$ ($x=0-8$) における (a) S の実験値 (プロット) と計算値 (破線)、(b) σ 、(c) zT の温度依存性、(d) S の計算に用いたバンド

で $zT=0.2$ まで増大した(図 1(c))。これは、500 K 以下のありふれた低温廃熱を利用した熱電材料として半導体近似結晶が有望であることを示す結果である。また、Cu ドープによる電子状態の変化を考察するために、第一原理計算で得られた電子構造を基にリジッドバンド近似の下で正孔密度とバンドギャップをパラメータとして S 、 σ を計算して実験結果と比較した。図 1(d) のように正孔密度を増加させるとともにバンドギャップを減少させて各試料の x に対応する S の温度依存性を計算した結果、Cu ドープ量 x を増加させた S の温度依存性の実験値を定量的に再現した。これにより Cu ドープは正孔密度を増加させるホールドーパントとして有効ではあるが、バンドギャップを減少させてしまい zT の最大値を減少させる効果もあることが分かった。そのため、更なる zT の向上には元素置換を施してもバンドギャップを維持できるドーパントを検討する必要があることが示唆された。さらに、Mn をドープすることで p 型で、Rh, Pd をドープすることで n 型で、熱電特性をさらに向上させられることが明らかになった(雑誌論文の 2 番目)。

A-2) Al-Pd-Co 系 1/1 近似結晶の電子状態解析と熱電物性

半導体 1/0 近似結晶の設計指針を活かして、より高次の近似度を持つ 1/1 近似結晶で半導体を創製することを試みた。半導体 1/1 近似結晶の実現可能性については、Krajci らによって、少なくとも 9 つの異なる組成の 1/1 近似結晶モデルが半導体的なバンド構造を示すことが第一原理計算によって予測されている[13]。そこで、その仮想構造の 1 つを有する Al-Pd-Co 系の F 相[17]に着目し、半導体化を目指して理論と実験の両面から電子状態の解析を試みた。

第一原理計算の結果から、Al-Pd-Co 系 1/1 近似結晶モデル($\text{Al}_{92}\text{Pd}_8\text{Co}_{28}$ ($\text{Al}_{71.9}\text{Pd}_{6.3}\text{Co}_{21.9}$))は半導体的なバンド構造を示すことが分かった。最局在ワニエ関数によるモデルを構築しその起源を調べたところ、遷移金属間に存在する共有結合が起源で、さらに、結合軌道の中には 1/0 近似結晶で確認されている従来の 2 中心結合だけでなく、**金属間化合物としてはユニークな 3 中心結合が存在することが分かった**。この結果は、固体中で 3 中心結合が存在することを示した初めての例であり、従来の Al 系近似結晶やそれに関連する金属間化合物半導体の電子状態を説明する電子則[7, 16]の例外となる重要な結果である。

一方で仕込み組成を上記のモデル組成近傍で変えて単相組成を探索したところ、 $\text{Al}_{71.5}\text{Pd}_{9.5}\text{Co}_{19}$ で単相試料が得られたので物性を測定した結果、 S と σ は半導体ではなく半金属的な温度依存性を示した。この原因を調べるために空間群を保ったまま取り得る原子配置全てのパターンでエネルギー安定性を計算すると、半導体的なバンド構造を示すモデルよりもバンドギャップが閉じた半金属的なバンド構造を示すモデルがエネルギー的に最安定であることが分かった。よって作製した試料の Co サイトと Pd サイトの配置が最初に仮定した結晶構造モデルと異なることが半金属的な物性の原因であると分かり、**1/1 近似結晶ではサイト選択性がバンド構造に大きな影響を与えることを明らかにした(雑誌論文の 8 番目)**。

A-3) Al-Pd-Ru 系 2/1 近似結晶・準結晶の電子状態解析と熱電物性

半導体 1/1 近似結晶の電子構造解析で見つかった 3 中心結合を取り入れた電子則に従えば、2/1 近似結晶で類似の結合ネットワークを持つ Al-Pd-Ru 系の 2/1 近似結晶[18]が半導体となる可能性がある。ここで、実験的には 2/1 近似結晶は P_{40} 相と P_{20} 相の 2 種類が存在し、 P_{40} 相は P_{20} 相の $2 \times 2 \times 2$ の超格子構造を持つことが知られている。また、Al-Pd-Ru 系は準結晶(I 相)も 2/1 近似結晶の近傍組成に存在することが確認されており、これも半導体準結晶の候補として着目し、電子構造と熱電物性の解明を試みた。

第一原理計算を用いて P_{40} 相に相当する Al-Pd-Ru 系 2/1 近似結晶モデル($\text{Al}_{396}\text{Pd}_{76}\text{Ru}_{72}$ ($\text{Al}_{72.8}\text{Pd}_{14.6}\text{Ru}_{13.2}$))の電子状態密度を計算するとフェルミエネルギー(ϵ_F)近傍に 0.11 eV のバンドギャップが確認でき、Al-Pd-Ru 系 2/1 近似結晶・準結晶が半導体候補物質として有望であることが確認できた。仕込み組成 $\text{Al}_{72.5-0.5x}\text{Pd}_{17+x}\text{Ru}_{10.5-0.5x}$ ($x=0, 1, 2, 3$)で試料を作製し XRD 物性測定を行った結果、 $x=0$ は P_{40} 相、 $x=1, 2$ は I 相、 $x=3$ は P_{20} 相であることが分かった。

S と σ は全ての試料で縮退半導体的な振舞いを示した。特に $x=2$ の試料では 500 K において $100 \mu\text{V K}^{-1}$ を超える比較的大きな S を示した。また、 $x=0-3$ における σ の高温領域でのアレニウスプロットからバンドギャップを見積もるといずれも **0.2 eV 程度の値が得られた**。しかし、 σ が指数関数的な温度依存性を示しているのは高温領域のみであるため、これらの試料の ϵ_F 近傍の電子状態が擬ギャップであっても同様のふるまいを示す可能性がある。そのため、Al-Pd-Ru 系近似結晶・準結晶が有限の大きさのバンドギャップを持っているかどうかを調べるには真性半導体的な温度依存性を示す試料の作製が望まれる。

真性半導体を作製する指針を得るために、既存の試料の電子状態を第一原理計算で得た $\text{Al}_{396}\text{Pd}_{76}\text{Ru}_{72}$ モデルの電子構造を用いてキャリア密度を変えて S を計算し、実験値と比較した。これにより、単位胞当たりの正孔を 2-3 個とした S の計算値が $x=0-2$ における実験結果を定量的に再現することが分かった。特に $x=1, 2$ は準結晶相の試料であるが、これらの実験値を 2/1 近似結晶の電子状態を用いて再現できることは、Al-Pd-Ru 系では準結晶と 2/1 近似結晶は非常に類似した電子状態を持っていることを示唆する。この結果から、**合成した試料が価電子帯に ϵ_F を持つ縮退半導体的な電子構造を持つことが分かり、Al-Pd-Ru 系準結晶に電子を単位胞当たり 2-3 個ドープをすることで半導体準結晶が実現できることを示唆している**。

B) B系正20面体準結晶の創製

図2は、ボロン単体の様々な結晶構造と準結晶構造の生成エネルギーを見積もった結果である。 α と β 菱面体晶ボロンの単位胞は、正20面体準結晶の二つの単位胞の一つ(plate)と考えられるのが、対応するもう一つの単位胞(oblate)の生成エネルギーは既存の報告のある構造よりも生成エネルギーが大きく、不安定であった。plateとoblateが組み合わさってできる1/1近似結晶の生成エネルギーは、かなり下がるが α 型では、まだ実現するには大き過ぎる。plateとoblateの生成エネルギーの重みを付き平均である近似式による推定値(E_{coh})が α 型1/1近似結晶において第一原理計算による生成エネルギーの計算値とほぼ一致し、近似式の妥当性が確認された。 β 型1/1近似結晶と準結晶の推定値は、準安定相として実在する α 正方晶ボロンの生成エネルギーよりも小さく、準安定相として β 型1/1近似結晶や準結晶の生成の可能性が示された。さらに、状態密度計算からボロン単体の準結晶も半導体であることが強く期待できることがわかった(雑誌論文の3番目)。

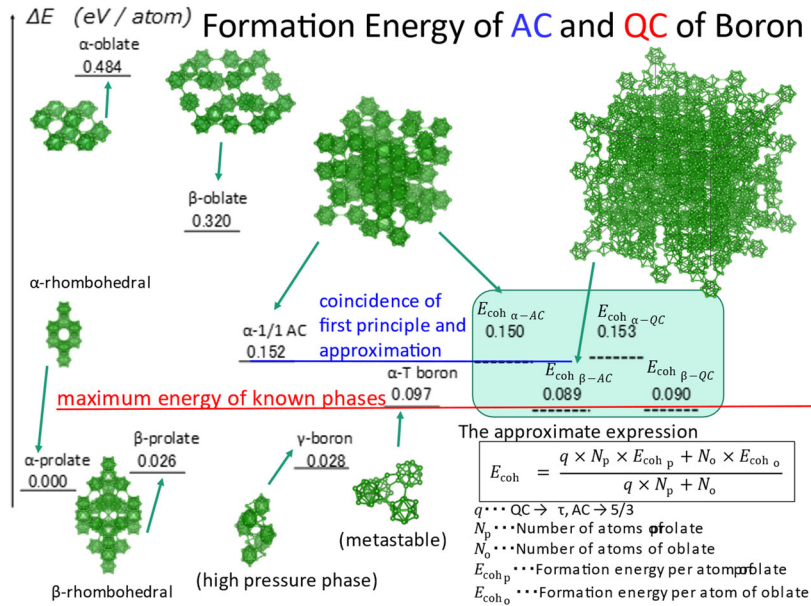


図2 生成エネルギーと近似式による推定値の比較。

静電浮遊法とハンマークエンチを用いて過冷却液体急冷したホウ素には β 菱面体晶だけでなく α 正方晶も含まれていることが明らかとなった。この α 正方晶は今までナノベルトとしてしか生成されておらず、準安定構造が過冷却液体急冷によって生成したといえる。生成した α 正方晶ホウ素の格子定数は $a = 8.90 \text{ \AA}$, $c = 5.16 \text{ \AA}$ であった。 a については報告されている値の範囲の中にあっただが、 c は今まで報告されたどの値よりも1-2%程度大きかった。さらに、XRDおよびTEM観察では、それぞれ既知の構造では説明できないピークおよび回折パターンを得た。これらがどのような構造によるものかは分かっておらず、今後の課題である。

静電浮遊法とハンマークエンチを用いて過冷却液体急冷したホウ素には β 菱面体晶だけでなく α 正方晶も含まれていることが明らかとなった。この α 正方晶は今までナノベルトとしてしか生成されておらず、準安定構造が過冷却液体急冷によって生成したといえる。生成した α 正方晶ホウ素の格子定数は $a = 8.90 \text{ \AA}$, $c = 5.16 \text{ \AA}$ であった。 a については報告されている値の範囲の中にあっただが、 c は今まで報告されたどの値よりも1-2%程度大きかった。さらに、XRDおよびTEM観察では、それぞれ既知の構造では説明できないピークおよび回折パターンを得た。これらがどのような構造によるものかは分かっておらず、今後の課題である。

<引用文献> (研究代表者に二重下線、研究協力者に下線)

- [1] K. Kimura, H. Iwahashi, T. Hashimoto, S. Takeuchi, U. Mizutani, S. Ohashi and G. Itoh, *Journal of the Physical Society of Japan*, **58**, 2472 (1989).
- [2] K. Kimura, M. Takeda, M. Fujimori, R. Tamura, H. Matsuda, R. Schmechel, and H. Werheit, *Journal of Solid State Chemistry*, **133**, 302 (1997).
- [3] 竹内伸, 枝川圭一, 蔡安邦, 木村薫 著、書籍「準結晶の物理」朝倉書店 (2012).
- [4] 木村薫, *固体物理* **48**, 301(2013). (小特集企画)
- [5] Y. Takagiwa, and K. Kimura, *Science and Technology of Advanced Materials*, **15**, 044802 (12pp) (2014). (依頼論文、Review)
- [6] Y. Iwasaki, K. Kimura, *et al.*, *Journal of Alloys and Compounds*, **763**, 78 (2018).
- [7] K. Kitahara, Y. Takagiwa, K. Kimura, *Journal of the Physical Society of Japan*, **84**, 014703 (2015).
- [8] J.T. Okada, K. Kimura, *et al.*, *Physical Review Letters*, **114**, 177401 (2015). (ヤフーニュース、科学新聞、他3紙に掲載)
- [9] J.T. Okada, T. Ishikawa, Y. Watanabe, P.-F. Paradis, Y. Watanabe, and K. Kimura, *Physical Review B*, **81**, 140201 (2010). (PRB 注目論文)
- [10] Y. Miyazaki, J. T. Okada, E. Abe, Y. Yokoyama, and K. Kimura, *Journal of the Physical Society of Japan*, **79**, 073601 (2010). (JPSJ 注目論文、日刊工業新聞に掲載)
- [11] Y. Pei, G. J. Snyder, *et al.*, *Nature*, **473**, 66 (2011).
- [12] T. Nagatochi, K. Kimura, *et al.*, *Physical Review B*, **83**, 184507 (2011).
- [13] M. Krajci and J. Hafner, *Phys. Rev. B* **67**, 052201 (2003). 他
- [14] J. Dshemuchadse, P. Kuczera, and W. Steurer, *Intermetallics*, **32**, 337 (2013).
- [15] Y. Iwasaki, K. Kimura, *et al.*, *Physical Review Materials*, **3**, 061601(R) (2019).
- [16] K. Kitahara and K. Kimura, *Zeitschrift fuer Kristallographie*, **232**, 507 (2017).
- [17] K. Sugiyama *et al.*, *Acta Physica. Polonica A*, **126**, 588 (2014).
- [18] D. Pavlyuchkov *et al.*, *Journal of Alloys and Compounds*, **469**, 146 (2009).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 岩崎祐昂、北原功一、木村 薫	4. 巻 56
2. 論文標題 半導体ハイパーマテリアルの探索	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 653 ~ 662
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yutaka Iwasaki, Koichi Kitahara, Kaoru Kimura	4. 巻 5
2. 論文標題 Effects of Cu doping on thermoelectric properties of Al-Si-Ru semiconducting quasicrystalline approximant	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 125401-1 ~ 6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.125401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takahiro Takahashi, Koichi Kitahara, Yukari Katsura, Junpei Okada, Yu-ichiro Matsushita, Kaoru Kimura	4. 巻 108
2. 論文標題 Search for the boron quasicrystal by first-principle-calculation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Solid State Sciences	6. 最初と最後の頁 106377 ~ 106377
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.solidstatesciences.2020.106377	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kitahara Koichi, Takagiwa Yoshiki, Kimura Kaoru	4. 巻 60
2. 論文標題 Thermoelectric Properties of Quasicrystalline Approximant in Al-Cu-Ir System	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 2490 ~ 2498
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.M2019073	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Iwasaki Yutaka, Kitahara Koichi, Kimura Kaoru	4. 巻 61
2. 論文標題 Vacancy Control and Enhancement of Thermoelectric Properties of Al-Ir Cubic Quasicrystalline Approximant via High-Pressure Synthesis	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 2079 ~ 2082
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.E-M2020845	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Iwasaki Yutaka, Kitahara Koichi, Kimura Kaoru	4. 巻 851
2. 論文標題 Band engineering in Al-TM (TM=Rh, Ir) quasicrystalline approximants via alloying and enhancement of thermoelectric properties	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 156904 ~ 156904
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2020.156904	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kitahara Koichi, Kimura Kaoru	4. 巻 62
2. 論文標題 Interband Contribution to Thermoelectric Properties of Al-Cu-Ir Quasicrystalline Approximant	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 149 ~ 154
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.E-M2020864	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Iwasaki Yutaka, Kashimura Tomoyuki, Kitahara Koichi, Kimura Kaoru	4. 巻 62
2. 論文標題 Possibility of Semiconducting Electronic Structure on Al-Pd-Co 1/1 Cubic Quasicrystalline Approximant	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 317 ~ 320
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-MB2020016	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計26件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 10件）

1. 発表者名 Y. Iwasaki, Y. Kanehara, K. Kitahara, K. Kimura
2. 発表標題 Thermoelectric properties of Al-Pd-Ru quasicrystal and its 2/1 approximant
3. 学会等名 MATERIALS RESEARCH MEETING 2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩崎祐昂, 金原悠人, 五十嵐滉介, 辻悠基, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Pd-Ru準結晶と2/1近似結晶の熱電物性
3. 学会等名 第26回準結晶研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 辻悠基, 金原悠人, 岩崎祐昂, 五十嵐滉介, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Pd-Ru系近似結晶と・準結晶の熱電物性における Cuドーブ効果
3. 学会等名 第26回準結晶研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩崎祐昂, 金原悠人, 五十嵐滉介, 辻悠基, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Pd-Ru系2/1近似結晶・準結晶における熱電特性
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 五十嵐 滉介, 岩崎 祐昂, 北原 功一, 木村 薫
2. 発表標題 Al-Si-Ru 系近似結晶半導体の 熱電特性におけるキャリアドー プ効果
3. 学会等名 第 18 回日本熱電学会学術講演会(TSJ2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Kitahara, K. Kimura
2. 発表標題 Interband Contribution to Thermoelectric Properties of Al-Cu-Ir Quasicrystalline Approximant
3. 学会等名 MATERIALS RESEARCH MEETING 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yoshiki Takagiwa, Kaoru Kimura
2. 発表標題 Thermoelectric Properties of an Al-Pd-Re-Fe Quasicrystal and its Approximant Synthesized by Spark Plasma Sintering
3. 学会等名 MATERIALS RESEARCH MEETING 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Igarashi, Y. Iwasaki, K. Kitahara, K. Kimura
2. 発表標題 Effect of carrier doping on thermoelectric properties of Al-Si-Ru semiconducting quasicrystalline approximant
3. 学会等名 MATERIALS RESEARCH MEETING 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 五十嵐滉介, 岩崎祐昂, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Si-Ru半導体近似結晶の熱電特性におけるキャリア・ドーピング効果
3. 学会等名 第26回準結晶研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Kimura, Y. Iwasaki, T. Takahashi, K. Kitahara, Y. Katsura, Y. Takagiwa, J.T. Okada
2. 発表標題 Search for semiconducting quasicrystal and high-performance thermoelectric material
3. 学会等名 The 38th International Conference on Thermoelectrics (ICT2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaka Iwasaki, Koichi Kitahara, Kaoru Kimura
2. 発表標題 Experimental Realization of Semiconducting Quasicrystalline Approximant in Al-Si-Ru System by Band Engineering
3. 学会等名 The 38th International Conference on Thermoelectrics (ICT2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 F型正二十面体準結晶に対するKatz-Gratias-Yamamotoモデルの変種とその局所構造
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岩崎祐昂, 北原功一, 木村 薫
2. 発表標題 バンドエンジニアリングによる Al-Si-Ru 系近似結晶半導体の 創製
3. 学会等名 日本熱電学会 第16回学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 北原功一, 高際良樹, 木村薫
2. 発表標題 Al-Cu-Ir 系近似結晶の熱電特性
3. 学会等名 日本熱電学会 第16回学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Takahashi, K. Takizawa, K. Kitahara, Y. Katsura, J. T. Okada, D. N. Hamane, K. Kimura
2. 発表標題 Search for the boron-rich quasicrystals by First-principle-calculation and Electrostatic levitation supercooled-liquid quenching method
3. 学会等名 20th International Symposium on Boron, Borides and Related Materials (ISBB 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 櫻村 知之、岩崎 祐昂、北原 功一、木村 薫
2. 発表標題 Al-Pd-Co系1/1近似結晶(半導体候補物質)の熱電特性解明
3. 学会等名 日本金属学会 2020年春期(第166回)講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩崎祐昂, 櫻村知之, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Pd-Co系1/1近似結晶の電子状態解析
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Cu-Ir系近似結晶の熱電特性に対するバンド間効果
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩崎祐昂, 櫻村知之, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Pd-Co系1/1近似結晶の電子状態解析
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 北原 功一, 木村 薫
2. 発表標題 Al-Cu-Ir系近似結晶の熱電特性に対するバンド間効果
3. 学会等名 日本熱電学会 第17回学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩崎祐昂, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Si-Ru系近似結晶半導体におけるCuドーピング効果
3. 学会等名 日本熱電学会 第17回学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kaoru KIMURA
2. 発表標題 Mechanisms of High-Performance Thermoelectric Materials and Advantages of Semiconducting Quasicrystal
3. 学会等名 The 5th Asian Conference on Thermoelectrics (ACT5) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Koichi KITAHARA and Kaoru KIMURA
2. 発表標題 Interband Contribution to Thermoelectric Properties of Al-Cu-Ir Quasicrystalline Approximant
3. 学会等名 The 5th Asian Conference on Thermoelectrics (ACT5) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yutaka IWASAKI, Koichi KITAHARA, Kaoru KIMURA
2. 発表標題 Effect of Cu doping on Thermoelectric properties of Al-Si-Ru semiconducting quasicrystalline approximant
3. 学会等名 The 5th Asian Conference on Thermoelectrics (ACT5) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 五十嵐滉介, 岩崎祐昂, 北原功一, 木村薫
2. 発表標題 Al-Si-Ru系近似結晶半導体の熱電特性におけるMnドーブ効果
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (2021年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩崎祐昂
2. 発表標題 半導体ハイパーマテリアルの探索
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (2021年) (招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 木村薫, 桂ゆかり	4. 発行年 2020年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 341
3. 書名 次世代熱電変換材料・モジュールの開発	

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京大学大学院新領域創成科学研究科 物質系専攻 旧木村薫研究室
<http://www.phys.mm.t.u-tokyo.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	北原 功一 (Kitahara Koichi)		
研究協力者	岩崎 祐昂 (Iwasaki Yutaka)		
研究協力者	桂 ゆかり (Katsura Yukari)		
研究協力者	岡田 純平 (Okada Junpei)		
研究協力者	高橋 昂宏 (Takahashi Takahiro)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------