

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 4 日現在

機関番号：32660

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2012～2013

課題番号：24860057

研究課題名(和文) 熱電シミュレーション手法の構築とナノ材料への応用

研究課題名(英文) Development of new simulation method for thermoelectric properties for nanomaterials and its application

研究代表者

高田 幸宏 (Takada, Yukihiro)

東京理科大学・工学部・ポストドクトラル研究員

研究者番号：30637244

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円、(間接経費) 690,000円

研究成果の概要(和文)：持続可能な発展という社会要請から、廃熱から有用な電気エネルギーを回収する熱電変換材料に関する基礎研究の重要性がますます高まっている。本研究では、物性物理学と計算科学の立場からこの問題に貢献するため、波束ダイナミクス法による熱電変換解析理論の構築とシミュレータの開発を行なった。また、開発したシミュレータを使ってカーボンナノチューブの電気伝導におけるランダム不純物の影響やナノ構造体中の電気伝導における電子間相互作用の影響について調べた。

研究成果の概要(英文)：According to the social demand for developing the energy harvesting technologies, enhancement of thermoelectric performance of materials have been attracted much attention both for the fundamental science and device applications. In this study, we have developed a new simulation method for the thermoelectric properties of materials and constructed a new simulator based on the theory we developed. Furthermore, we investigated the electronic transport properties on semiconducting carbon nanotubes with randomly distributed impurities and the influence of the electron-electron interaction onto the electronic transport on nanoscale structures with the use of the simulator.

研究分野：物性理論

科研費の分科・細目：工学基礎

キーワード：シミュレーション 熱電変換 電気伝導 ナノ材料

1. 研究開始当初の背景

今日の社会が指向する持続可能な発展のため、自然エネルギーや再生可能エネルギー利用の重要性和緊急性が飛躍的に高まってきている。そのような社会状況の中、廃熱から有用な電気エネルギーを回収する熱電材料の開発が再注目されている。しかしながら、現状の熱電材料は高価である上に変換効率が低く、利用範囲が極めて限定されている。さらに既存の多くの熱電材料は毒性のあるビスマスや鉛などの重金属を含んでおり、地球環境への観点からも望ましいとは言えない。そのため、シリコンやカーボンなどといった地球環境にフレンドリーな元素から成る高性能熱電変換材料の創造が必須である。

2008年にアメリカの2つの実験グループがシリコンナノワイヤの熱電変換効率を非常に向上させたことを発表した。これをきっかけに環境にフレンドリーなナノ物質を基軸とした高性能熱電変換材料の探索が世界的に注目を集めている。高性能熱電変換材料の開拓には、フォノンに対してはガラスの様に振舞う『低い熱伝導性』と電子に対しては結晶の様に振舞う『高い電気伝導性』を両立した状態の実現が必要である。この状態の実現のためには、量子力学に立脚した原子レベルからの解析と材料設計が強力なツールになりうる。

これまで電気伝導・熱伝導シミュレーションに関する研究は目覚ましい発展を遂げてきた。しかしながら、両者が独立して研究されてきた経緯もあり、電気伝導と熱伝導の交差相関現象である熱電変換現象を原子レベルで解析する「ナノスケール熱電相関物理」の進展は随分遅れている。ナノ材料による高性能熱電変換材料の実現とその裏付けとなる「ナノスケール熱電相関物理」の発展は、材料設計の立場のみならず基礎物理の立場からも大きな挑戦である。

2. 研究の目的

本研究課題は、期間中に次の3つの項目の実施を目的としていた。

(1) 波束ダイナミクス法による熱電変換解析手法の確立とシミュレータの開発

ナノ物質における熱電変換を原子レベルで解析する手法の確立とそれに立脚したプログラムコードの開発を行なう。基盤となる理論は、量子力学に基づく電気伝導理論、熱伝導理論、そして波束ダイナミクス法である。

(2) 多体相関効果が引き起こすナノ物質特有の輸送現象の予測と解明

項目(1)で開発したシミュレータを既存および新規ナノ物質に応用する。波束ダイナミ

クス法は相互作用を容易に取り入れられるという特徴を持っている。そのため、多体相互作用を取り込んだ波束ダイナミクス法によって初めて高精度に解析可能な現象に着目し、その予測とメカニズムの解明を行なう。

(3) 高性能熱電変換ナノ材料設計指針の提案とデータベース公開

項目(2)によって得られた知見を元に、高性能熱電変換ナノ材料の開発・設計指針を理論的に与える。また、各種ナノ材料の熱電変換効率の温度依存性や構造依存性などのデータを系統的に整理し、それらをデータベースとして発信することを目指す。

3. 研究の方法

本研究課題の研究方法について、各年の研究計画を元に記す。

【1年目の研究計画】

研究の目的で挙げた項目のうち、(1)と(2)の項目を実施する。項目(1)に関しては、既に開発済みであった波束ダイナミクス法による電気伝導シミュレータ(プロトタイプシミュレータ)の改良を行う。項目(2)に関しては、プロトタイプシミュレータを用いて多体相関効果によって引き起こされる新規物理現象の予測と解明を行なう。

【2年目の研究計画】

1年目から改良を行っていたプロトタイプシミュレータの開発を進め、項目(1)の目的である熱電変換解析シミュレータの完成を目指す。項目(2)については、シリコンやカーボンなど環境にフレンドリーな元素から構成される各種ナノ物質内での物理現象の解析を行なう。このとき、原子種の違いは主に経験的パラメータを用いた強結合近似計算により取り入れる。また、項目(1)で開発したシミュレータにより得られたナノ物質の熱電変換効率の温度依存性、構造依存性の様々なデータを系統的にデータベース化し、公開する。仮に、1年目終了時に研究が計画通りに進行していない場合には、2年目において項目(1)で挙げたシミュレータ開発を最優先し、その完成に向けて全力を尽くす。

4. 研究成果

【1年目の研究成果】

(1) 研究計画で挙げた通り、目的(1)に沿ってプロトタイプシミュレータの改良を行なった。プロトタイプシミュレータの改良により線形応答理論をベースにした手法で波束ダイナミクス法によって、電気伝導度や電気伝導に關係する物理量である拡散係数を計

算することが可能となった。

また、改良したシミュレータを用いてランダムに不純物が存在するカーボンナノチューブの電気伝導特性を調べた(論文1)。本研究では特にランダム不純物の持つエネルギーに注目し、その変化が電子輸送特性に与える影響を考察した。計算によって得られた拡散係数の時間的な変化を調べたところ、不純物の存在によってアンダーソン局在と呼ばれる現象がおき、電気伝導が阻害されることがわかった。アンダーソン局在現象においては、局在長とよばれる局在した電子波動関数の広がりが鍵となる物理量である。計算によって局在長が短い条件では、アンダーソン局在がより起こりやすいと言える。一方で、この現象が起こるには局在長と考えているシステムのサイズが重要である。つまり、システムサイズが局在長より短い場合には電子波動関数がシステム全体に広がることのできるため、電気伝導の阻害は起こらない。波束ダイナミクス法による計算の結果、不純物の持つエネルギーが大きくなるほど、局在長が短くなるという結果を得た。これは不純物のエネルギーが大きいほどアンダーソン局在が起こりやすくなることを示している。また、本研究によって得られた結果はアンダーソン局在現象が室温下でも起こることを示唆しており、近年の実験結果を支持するものであることがわかった。これらの結果より、次年度の課題である熱電変換解析シミュレータへの更なる拡張への基礎となるシミュレータが完成したと判断した。

(2) 目的(2)に沿って、多電子波束ダイナミクス法を用いたプロトタイプシミュレータによって、ナノ構造中の多体相関現象について考察を行なった(論文2)。ハートリーフォック近似によって電子相関効果を取り込んだ波束ダイナミクス法のシミュレーションによって、弱い電子間相互作用下においてもクーブスマンの定理が満たされることを明らかにした。

【2年目の研究成果】

当初の計画に沿って前年に改良したシミュレータを熱電変換解析シミュレータへ拡張する研究に取り組んだ。第一に熱電変換物性解析のための理論の構築に取り組んだ。新たな理論は、波束ダイナミクス法と線形応答理論をベースにしている。この取り組みによって熱電物性を計算するための新規理論の構築に成功した。その後、構築した理論を用いた熱電変換シミュレータの開発に取りかかり、波束ダイナミクス法により熱電物性を計算できるシミュレータの開発に成功した。現在、本シミュレータを用いた計算結果をまとめた論文を準備している。しかしながら、この2つの行程のため、当初の計画よりも進捗が遅れ、シミュレータの開発を最優先

して研究を進めた。

5. 主な発表論文等 (研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計2件)

1. “Wave Packet Dynamics Simulation on Electronic Transport in Carbon Nanotubes with Randomly Distributed Impurities”, Yukihiro Takada and Takahiro Yamamoto, Japanese Journal of Applied Physics, 52, 06GD07 (2013), 査読有り
doi: 10.7567/JJAP.52.06GD07
2. “Influence of Coulomb Blockade on Wave Packet Dynamics in Nanoscale Structures”, Taro Shiokawa, Genki Fujita, Yukihiro Takada, Satoru Konabe, Masakazu Muraguchi, Takahiro Yamamoto, Tetsuo Endoh, Yasuhiro Hatsugai and Kenji Shiraishi, Japanese Journal of Applied Physics, 52, 04CJ06 (2013), 査読有り
doi: 10.7567/JJAP.52.04CJ06

〔学会発表〕(計14件)

- (1) “Influence of Randomly Distributed Impurities on Electronic Transport in Carbon Nanotubes: Wave-Packet Dynamics Simulation”, Yukihiro Takada, Kengo Takashima, and Takahiro Yamamoto, 19th International Vacuum Congress (IVC-19), Sep. 9-13, 2013 (Paris, France), Oral Presentation
- (2) “Computational Simulation on Electronic Transport in Edge-Disordered Graphene Nanoribbons”, Kengo Takashima, Yukihiro Takada and Takahiro Yamamoto, 19th International Vacuum Congress (IVC-19), Sep. 9-13, 2013 (Paris, France), Poster Presentation
- (3) “Impurity Effects on Electronic Transport in Carbon Nanotubes: Wave Packet Dynamics

Simulation”Yukihiro Takada and Takahiro Yamamoto, The Fourteenth International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT13), June. 24-28, 2013 (Helsinki, Finland), Poster Presentation

(4) “Wave Packet Dynamics Simulations on Electronic Transport in Nano-Carbon Materials”, Yukihiro Takada, Kengo Takashima, and Takahiro Yamamoto, 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2012), Oct. 30-Nov. 2, 2012 (Kobe, Japan), Oral Presentation

(5) “Effect of Coulomb Interaction in Electron Wave Packet Dynamics in Nanoscale Devices”, Taro Shiokawa, Genki Fujita, Yukihiro Takada, Satoru Konabe, Masakazu Muraguchi, Takahiro Yamamoto, Tetsuo Endoh, Yasuhiro Hatsugai, and Kenji Shiraishi, 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2012), Sep. 25-27, 2012 (Kyoto, Japan), Poster Presentation

(6) “Multi-Electron Wave Packet Dynamics for Electron Transport in Classical-Quantum Crossover Regions”, Yukihiro Takada, Taro Shiokawa, Young Taek Yoon, Satoru Konabe, Yasuhiro Hatsugai, Kenji Shiraishi, and Takahiro Yamamoto, International Union of Material Research Societies – International Conference on Electronic Materials 2012 (IUMRS-IECM2012), Sep. 23-28, 2012 (Yokohama, Japan), Oral Presentation

(7) 「グラフェンナノリボンの電気伝導特性へのエッジラフネスの影響」：高島健吾、高田幸宏、山本貴博、日本物理学会 2013 年第 68 回年次大会、2013 年 3 月 26 日～29 日 (広島大学)、口頭発表

(8) 「多電子波束を用いた円電流ダイナミクスへの電子間相互作用の効果」：塩川太郎、藤田弦暉、高田幸宏、小鍋哲、村口正和、山本貴博、遠藤哲郎、初貝安弘、白石賢二、日本物理学会 2013 年第 68 回年次大会、2013 年 3 月 26 日～29 日 (広島大学)、口頭発表

(9) 「スピン自由度を考慮した多電子波束ダイナミクスにおける電子間相互作用の効果」：藤田弦暉、塩川太郎、高田幸宏、小鍋哲、村口正和、山本貴博、遠藤哲郎、初貝安弘、白石賢二、日本物理学会 2013 年第 68 回年次大会、2013 年 3 月 26 日～29 日 (広島大学)、口頭発表

(10) 「欠損のあるグラフェンナノリボンにおけるアンダーソン局在」：高島健吾、高田幸宏、山本貴博、第 44 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム、2013 年 3 月 11 日～13 日 (東京大学)、ポスター発表

(11) 「一次元非一様ポテンシャル中の波束ダイナミクス (タイトル変更；ベクトルポテンシャルを用いた電子波束による円電流シミュレーション)」：塩川太郎、藤田弦暉、高田幸宏、小鍋哲、村口正和、山本貴博、遠藤哲郎、初貝安弘、白石賢二、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 18 日～21 日 (関西学院大学)、口頭発表

(12) 「ナノ構造中の多電子波束ダイナミクスにおける電子間相互作用の効果」：藤田弦暉、塩川太郎、高田幸宏、小鍋哲、村口正和、山本貴博、遠藤哲郎、初貝安弘、白石賢二、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 18 日～21 日 (横浜国立大学)、口頭発表

(13) 「古典-量子クロスオーバー系における

電子波束ダイナミクス」、高田幸宏、塩川太郎、尹永択、小鍋哲、初貝安弘、白石賢二、山本貴博、2012年秋季第73回応用物理学会学術講演会、2012年9月11日～14日（愛媛大学・松山大学）、口頭発表

(14) 「グラフェンナノリボンの電気伝導特性に関する波束ダイナミクスシミュレーション」：高田幸宏、高島健吾、山本貴博、第43回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム、2012年9月5日～7日（東北大学）、ポスター発表

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高田 幸宏 (TAKADA, Yukihiro)
東京理科大学・工学部・ポストドクトラル
研究員
研究者番号： 30637244