#### 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 7 日現在

機関番号: 17102

研究種目: 基盤研究(B)(一般)

研究期間: 2014~2016

課題番号: 26289242

研究課題名(和文)バルクナノヘテロ構造を有する酸化物熱電変換材料の開発

研究課題名(英文) Oxide thermoelectric materials with built-in bulk nanoheterostructures

#### 研究代表者

大瀧 倫卓 (Ohtaki, Michitaka)

九州大学・総合理工学研究科(研究院)・教授

研究者番号:50223847

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文):バルクn型酸化物熱電材料として現時点で最も有望なZn0をバルク母相として、多元素複合ドープによるナノサイズ第二相の析出、形態を制御した金属ナノ粒子の分散などの方法で様々なナノヘテロ界面を導入した。複合させるドーパントの種類によって全く異なるナノヘテロ構造が得られ、その電子・フォノン散乱機構も大きく異なること、従って、ドーパントの組み合わせによって複数のフォノン散乱機構を増強できる可能性を示した。また、金属ナノ粒子のバルク内分散によってもフォノンの選択散乱増強の可能性が示唆され、ナノヘテロ構造の導入による酸化物熱電変換材料の性能向上へ向けた新たな指針が得られた。

研究成果の概要(英文):Nano-heterostructured ZnO ceramics were prepared by multinary doping and dispersion of metallic nanoparticles into the bulk oxide samples. Significantly different nanostructures with also different scattering mechanisms were obtained with different dopants suggesting an enhancement of multiple scattering mechanisms might be possible by carefully selecting a combination of dopants. Dispersion of metallic nanoparticles such as Au and Ag were also enabled us to enhance the electrical conductivity and to reduce the thermal conductivity simultaneously. Nanoheterostructures are thereby strongly suggested to be promising to further improve the thermoelectric performance of oxide-based thermoelectric materials.

研究分野: 無機材料化学、工業物理化学

キーワード: ナノ微細構造 ヘテロ界面 酸化亜鉛 酸化物熱電変換材料 共ドープ フォノン散乱 熱伝導率 ナノ粒子

#### 1. 研究開始当初の背景

21 世紀の人類社会の最大の目標である「持続可能な社会」の実現にとって、エネルギー 利用の高効率化は最重要課題の一つである。

温度差から直接電力を発生する熱電発電は、可動部分を全く持たないので騒音・振動・排出物を一切伴わず、しかも微小な温度差め、利用廃熱エネルギーの有効利用技術として換熱エネルギーの有効利用技術として換効率が不十分なため、実用化は宇宙・軍事分れでは北京市での利用など特殊な分野に限定される、これまでに実用化されて既存熱電材料は、ほとんどが Bi、Te、Pb、Sb、As等の重金属元素の化合物で、融点が低く元素に大いる。

本研究代表者は、従来の重金属化合物系半 導体とは一線を画した新しい熱電変換材料と して、無害で耐熱性に優れ、高強度で軽量な 酸化物熱電変換材料の開発を世界に先駆けて 進めてきた。熱電変換の効率は、出力因子  $S^2\sigma$ (Sはゼーベック係数、σは導電率) を熱伝導 率  $K = K_{el} + K_{ph}$  (添字 el と ph はそれぞれ電子 伝導と格子振動の寄与を示す)で割った性能 指数  $Z = S^2 \sigma / \kappa$  で決まり、Z に平均作動温度 Tを掛けた ZT が 1 以上で実用水準と言われて いる。酸化亜鉛(ZnO)は、化粧品や軟膏など にも使われる無害な n 型酸化物ワイドギャッ プ半導体で、ZnO に少量の Al をドープした Zn<sub>0.98</sub>Al<sub>0.02</sub>O は、宇宙用熱電発電機に実用化さ れている Si-Ge 系に匹敵する大きな出力因子  $S^2\sigma$ を示す。しかし ZnO 系をはじめ、酸化物材 料は一般に格子熱伝導率 $\kappa_{nh}$ が高いため、ZnOのトータルの熱電性能はこれまで ZT = 0.3 程 度と実用水準の約1/3に留まっていた。

これらの複合ドープ試料の破断面 SEM 像には、AI 単独ドープ試料には見られない数 100nm オーダーの微細な粒状組織が観測され、バルク母相の内部にナノサイズの異相が多数分散した「バルクナノへテロ構造」が自発的に形成されていると思われる。これらの知見から、生成した第二相とバルク母相とのナノヘテロ界面が ZnO の格子熱伝導率 $\kappa_{ph}$  の選択的低減と熱電性能の向上に有効である可能性が強く示唆されるが、その機構などの詳細は未だ明らかではなかった。

#### 2. 研究の目的

本研究では酸化物、特にバルクn型酸化物熱電材料として現時点で最も有望であり、かつ半導体としての諸物性が明らかなZnOをバルク母相として、ナノサイズ第二相の析出、形態を制御した金属ナノ粒子の分散などの方法で様々なナノヘテロ界面を導入し、以下のことを明らかにすることを目的とした。

- (1) A1 に加えて Ga や Cu を複合ドープした ZnO においては、ナノサイズ第二相の析出に伴ってσ/κph 比あるいはκel/κph 比が増大しており、電子伝導よりも格子熱伝導の低減の方が大きく、フォノン伝導の選択的抑制が実現していると考えられる。この結果は、ナノサイズのヘテロ構造が「電子伝導の障壁としては効果が薄いが、格子振動に対しては大きる。ドーパント元素の存在状態とナノ構造の関係、ならびに母相との界面状態をナノレベルで精査し、格子熱伝導率低減と選択的フォノン散乱の機構を明らかにする。
- (2) ナノヘテロ構造による熱電能増大の実験的検証を目的として、サイズや形状を制御した金属のナノ粒子を ZnO 母相に分散させ、熱電特性との関連を詳細に調べることにより、ナノヘテロ界面における熱電性能向上のメカニズムに関する系統的知見を得る。
- (3) ナノヘテロ構造の形状から母相との方位関係、原子レベルでの整合不整合などに至るマルチスケールのモデルを構築し、実験結果との比較によりバルクナノヘテロ構造熱電材料の設計指針を構築する。

# 3. 研究の方法

## (1) 複合ドープした ZnO の電気的・熱的輸送 特性の測定評価

n型ドーパントとしての Al に他元素 (Ga、Cu など) を複合ドープした ZnO 試料について、熱電特性を評価する。さらに、キャリアの散乱機構を明らかにするために、Hall 係数測定システムを構築し、キャリア散乱機構を決定する

# (2) 複合ドープした ZnO の微細組織観察と化 学組成分析

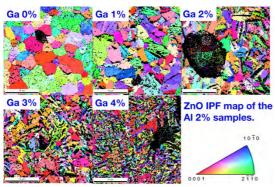
複合ドープした ZnO に多くの場合生成する第二相と試料内部の微細組織の関係を調べる。このため、低エネルギーAr イオンビームを用いたクロスセクションポリッシャ(CP)により、試料中の微細界面や元素分布を擾乱しない良好な平滑切断面を形成し、SEM/EDS、SEM/EBSD 等で観察して、試料内部の微細構造と組成分布を詳細に調べる。

# (3) 複合ドープ ZnO における電子とフォノン の散乱機構の解析

電子とフォノンの散乱強度を定量的に検討して、**フォノン選択散乱**の機構に関する知見を得る。さらに、赤外・ラマン振動スペクトルの実測などにより、格子振動モードへの複合ドーピングの影響を詳細に検討する。

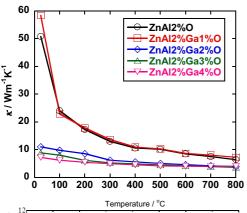
#### 4. 研究成果

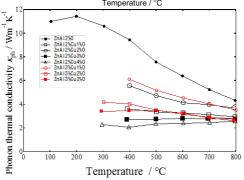
Al ドープ量を 2%に固定した Al,Ga 複合ドープ試料  $Zn_{0.98-x}Al_{0.02}Ga_xO$  焼結体断面を CP で研磨して SEM/EBSD 観察した結果、下図のように Ga0%と Ga1%試料は ZnO 相と  $ZnAl_2O_4$  スピネル相で構成されていたが、Ga2%試料と Ga3%試料ではこれら 2 相の結晶構造とは異なる直線的な形態をもつ結晶が観察された。この相は Ga のドープ量とともに増加していることや XRD 測定の結果から、Ga 由来のホモロガス相と考えられる。また Ga 量が増えるにつれて ZnO 相の粒径が著しく減少したため、粒界は Ga4%試料が最も多くなった。



各試料の熱伝導率の温度依存性を下図に示す。熱伝導率は Ga のドープ量が増えるにつれて低減し、特に  $x \ge 0.02$  で大きく低下した。これは、Ga ドープの増加に伴う ZnO 相の粒径の減少による粒界の増加と、スピネル類似相や Ga 由来のホモロガス相の生成が併発することによりフォノン散乱が増強されたためであると考えられる。

一方、Al と Cu を複合ドープした ZnO では、 $2\sim3\%$ の Cu のドープにより、Ai,Ga 複合ドー

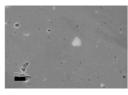


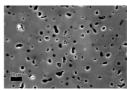


プよりさらに顕著に熱伝導率が低減することを見出した。上図に  $Zn_{1-x-y}Al_xCu_yO$  ( $x=0.02\sim0.03$ ,  $y=0\sim0.04$ ) の格子熱伝導率 $\kappa_{ph}$  の温度依存性を示す。これらの試料における電子熱伝導率 $\kappa_{el}$  の寄与は最大でも1割程度なので、例えば  $300^{\circ}$  Cにおいて Al, Ga 複合ドープ試料の熱伝導率は  $7\sim8$  W/mK 程度まで低下しているが、Al, Cu 複合ドープ試料では  $2\sim4$  W/mK 程度と、さらに大幅に低減している。

Hall 測定の結果、Cu の添加量が 2%以上ではキャリア濃度が  $10^{20}$  / $cm^3$  台から  $10^{14}$  / $cm^3$  台へと著しく低下した。ZnAl2%O と比べZnAl2%Cul%O のキャリア濃度はあまり下がっていないが、キャリア移動度は約 90  $cm^2$ /Vs から約 20  $cm^2$ /Vs へと明らかに低下していた。

下図に ZnAl2%O(左)と ZnAl2%Cu1%O(右)の断面 SEM 像を示す。Cu の添加により試料内の気孔が著しく増加している。これが Al,Cuの複合ドープ ZnO における格子熱伝導率の低減に大きく寄与しているものと思われる。





さらに、Agナノ粒子を高分散させた ZnO においては、フォノン散乱の増強による熱伝導率低減と導電率の向上が同時に達成可能であることが示された。

以上の結果から、ZnO への多元素複合ドープにおいて、ドーパントの種類によって全く 異なるナノヘテロ構造が得られ、その電子・フォノン散乱機構も大きく異なると考えられること、従って、ドーパントの組み合わせによって複数のフォノン散乱機構の増強を併発できる可能性があることを明らかにした。また、金属ナノ粒子のバルク内分散によっても、フォノンの選択散乱増強の可能性が示唆され、ナノヘテロ構造の導入による酸化物熱電変換材料の性能向上へ向けた新たな指針が得られた。

# 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 11 件)

- 1. Kohei MIZUTA, Michitaka OHTAKI, "Crystal Structure and Thermoelectric Properties of β-Pyrochlore-Type Alkali Iron Tungsten Oxides with Cage-Like Structure", Journal of Electronic Materials, 查読有, 45(3), 1695-1699 (2016).
  - DOI: 10.1007/s11664-015-4179-5
- Toshifumi OGAWA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Effects of microstructure on thermoelectric properties of dually doped ZnO", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy

- and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 97-98 (2015).
- 3. Kei WATANABE, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Switching the thermal conductivity by phase transitions in metal oxides", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 105-106 (2015).
- 4. Shinji HIRATA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis and thermoelectrics proreties of nanoporous oxide formed by selective leaching of metal nanoparticles", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 111-112 (2015).
- 5. Fumihiro Ishibashi, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis of low-dimensional nanomaterials in mesoporous silica", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 113-114 (2015).
- 6. Yosuke Araki, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis of NaFeO<sub>2-x</sub>P<sub>x</sub> by P-doping of layered oxide NaFeO<sub>2</sub>", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 115-116 (2015).
- 7. Shin-ichi Hayano, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis of nanosized layered compounds with molecular assembly template and characteristics changes with post-treatment", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 117-118 (2015).
- 8. Yoshinao KAI, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Thermoelectric properties of ferroelectric oxides reduced by hydrogen", Proceedings of the 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 121-122 (2015).
- 9. Michitaka OHTAKI, "Oxide Thermoelectric Materials for Power Generation from Mid-to-High Temperature Unused Heat Energy", Proceedings of the 16th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 29-32 (2014).
- 10. Kohei MIZUTA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Cagelike Structure Oxides AAl<sub>0.33</sub>Te<sub>1.67</sub>O<sub>6</sub> with Unconventional Phonon Scattering", Proceedings of the 16th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 查読無, pp. 175-176 (2014).
- 11. Taiga KURAGAKI, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Performance Stability of ZnO-based Oxide Thermoelectric Materials at High Temperature", Proceedings of the 16th Cross Straits Symposium on Energy and

Environmental Science and Technology, 査読 無, pp. 181-182 (2014).

## 〔学会発表〕(計 60 件)

- 1. Michitaka OHTAKI, "Crystal and Nanostructure Engineering in Oxide Thermoelectric Materials for Waste Heat Recovery", The Third International Workshop on Nano Materials for Energy Conversion (NMEC-3), 2017. 5. 3-6, Ho Chi Minh City (Vietnam).
- Michitaka OHTAKI, "Nanostructure and Phonon Engineering in Oxide Thermoelectric Materials", TMS 2017 146th Annual Meeting and Exhibition, 2017. 2. 27-3. 2, San Diego (USA).
- 3. Kosuke WATANABE, Kazuki MINE, Koichiro SUEKUNI, Michitaka OHTAKI, "Dispersion of Au Nanoparticles into ZnO Matrix and their Thermoelectric Properties", The 18th International Symposium on Eco-materials Processing and Design (ISEPD2017), 2017. 2. 17-20, 沖縄自治会館(沖縄県那覇市).
- Shinji HIRATA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis and thermoelectric properties of nanoporous oxide composites containing metal nanoparticles", The 18th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Sciences and Technology, 2016. 12. 4-6, Shanghai (China).
- Takuya KAGAWA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis and thermoelectric properties of layered oxyselenides and oxyphosphides", The 18th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Sciences and Technology, 2016. 12. 4-6, Shanghai (China).
- Michitaka OHTAKI, "Thermal Conductivity Reduction in Oxides for Thermoelectric Energy Conversion", The 33rd International Korea-Japan Seminar on Ceramics (K-J Ceramics 33), 2016. 11. 16-18, Daejeon (Korea).
- 7. Michitaka OHTAKI, "Oxide Thermoelectric Materials for Waste Heat Energy Recuperation", Global Congress & Expo on Materials Science & Nanoscience (Materials Science-2016), 2016. 10. 24-26, Dubai (UAE).
- 8. Michitaka OHTAKI, Kohei MIZUTA, Toshifumi OGAWA, "Oxide Materials for Thermoelectric Energy Conversion", Functional Energy Materials Conference, 2016. 9. 28-10. 1, Cavtat-Dubrovnik (Croatia).
- 9. <u>渡邊厚介</u>,小川敏史, <u>大瀧倫卓</u>, "ZnO 焼結 体への金属ナノ粒子分散プロセスと熱電 特性",日本セラミックス協会第29回秋季 シンポジウム,2016.9.7-9, 広島大学(広島 県東広島市).
- 10. 渡部啓, <u>大瀧倫卓</u>, 戸村信雄, 北岡賢治, 篠崎泰夫, "酸化物セラミックスの相転移 現象に伴う熱伝導率変化", 日本セラミッ

- クス協会第 29 回秋季シンポジウム, 2016. 9.7-9、広島大学(広島県東広島市).
- 11. 松﨑彰剛, 渡邊厚介, 大瀧倫卓, "ゾルゲル 法を用いた  $ZnO/TiO_2$  コアシェルナノ構造 の形成", 第 54 回化学関連支部合同九州大会, 2016.7.5, 北九州国際会議場(福岡県北九州市).
- 12. Michitaka OHTAKI, "ZnO-based Oxide Thermoelectric Materials with Microstructure Control for Selective Phonon Scattering", Materials Challenges in Alternative & Renewable Energy Conference (MCARE 2016), 2016. 4. 18-21, Clearwater (USA).
- 13. Michitaka OHTAKI, Kohei MIZUTA, "Enhanced Phonon Scattering in Cage-like Structure Oxides with "Rattling" Atoms", MRS 2016 Spring Meeting & Exhibit, 2016. 3.28-4. 1, Phoenix (USA).
- 14. 水田航平, 大瀧倫卓, "三価金属元素を含む  $\beta$ -パイロクロア型酸化物の熱電特性", 日本セラミックス協会 2016 年年会, 2016. 3. 14-16, 早稲田大学(東京都新宿区).
- 15. <u>渡邊厚介</u>, <u>大瀧倫卓</u>, "液相前駆体法による Ag/ZnO 焼結体の微細構造と熱電特性", 日本セラミックス協会 2016 年年会, 2016. 3. 14-16, 早稲田大学(東京都新宿区).
- 16. Michitaka OHTAKI, "Oxide Materials with Ultra-low Lattice Thermal Conductivity", Energy, Materials, and Nanotechnology (EMN) Meeting on Thermoelectrics, 2016. 2. 22-24, Orlando (USA).
- 17. Michitaka OHTAKI, Yuki IWANO, Taiga KURAGAKI, "Thermoelectric Performance of Multinary-doped ZnO with Enhanced Phonon Scattering", The 3rd International Renewable and Sustainable Energy Conference, 2015. 12. 10-13, Marrakech (Morocco)
- 18. Toshifumi OGAWA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Effects of microstructure on thermoelectric properties of dually doped ZnO", The 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 2015. 12. 3-5, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県春日市).
- 19. Kei WATANABE, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Switching the thermal conductivity by phase transitions in metal oxides", The 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 2015. 12. 3-5, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県春日市).
- 20. Shinji HIRATA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Synthesis and thermoelectric properties of nanoporous oxide formed by selective leaching of metal nanoparticles", The 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 2015. 12. 3-5, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県春日市).
- 21. Yosuke ARAKI, <u>Michitaka OHTAKI</u>, Synthesis of NaFeO<sub>2-x</sub>P<sub>x</sub> by P-doping of

- layered oxide NaFeO<sub>2</sub>, The 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 2015. 12. 3-5, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県春日市).
- 22. Yoshinao KAI, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Thermoelectric properties of ferroelectric oxides reduced by hydrogen", The 17th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, 2015. 12. 3-5, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県春日市).
- 23. <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Metal Oxides in Thermoelectrics: Beyond a Simple Picture of Ionic Compounds", International Conference on Thermoelectric Materials Science 2015 (TMS2015), 2015. 11. 9-11, 名古屋大学東山キャンパス(愛知県名古屋市).
- 24. <u>Kosuke WATANABE</u>, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Thermoelectric properties of Ag/ZnO sintered bodies prepared from soft-chemical precursors", MRS 2015 Fall Meeting & Exhibit, 2015. 11.29-12.3, Massachusetts (USA).
- 25. Kohei MIZUTA, Michitaka OHTAKI, "The crystal structures and thermoelectric properties of defect pyrochlore oxides with anharmonic vibration", MRS 2015 Fall Meeting & Exhibit, 2015. 11.29-12.3, Massachusetts (USA).
- 26. Michitaka OHTAKI, "Recent Progress in Oxide Thermoelectric Materials with Microstructure Control for Selective Phonon Scattering", The 14th International Union of Materials Research Societies - International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2015), 2015. 10. 25-28, Jeju (Korea).
- 27. <u>大瀧倫卓</u>, 倉垣大河, "ZnO 系酸化物熱電 材料の微細構造と高温挙動", 日本セラミ ックス協会第28回秋季シンポジウム, 2015. 9.16-18, 富山大学五福キャンパス (富山県 富山市).
- 28. 水田航平, 大瀧倫卓, "Fe-W-O 系  $\beta$  -パイロクロア型酸化物の熱電特性", 第 12 回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2015), 2015.9. 7-8,九州大学筑紫キャンパス(福岡県春日市).
- 29. <u>渡邊厚介</u>, 大瀧倫卓, "液相前駆体法による Ag/ZnO 焼結体の合成と熱電特性", 第 12 回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2015), 2015.9.7-8,九州大学筑紫キャンパス (福岡 県春日市).
- 30. 平田慎治, <u>大瀧倫卓</u>, "金属微粒子の選択溶 出によるナノ多孔質酸化物の合成と熱物 性", 第 12 回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2015), 2015. 9. 7-8,九州大学筑紫キャ ンパス(福岡県春日市).
- 31. Michitaka OHTAKI, Taiga KURAGAKI, Yuki IWANO, Kiyoshi YAMAMOTO, "Selective Phonon Scattering in ZnO-based Bulk Thermoelectric Oxides", Advanced Materials World Congress 2015 (AMWC2015), 2015. 8. 23-26, Baltic Sea (Sweden).

- 32. Kohei MIZUTA, <u>Michitaka OHTAKI</u>, "Crystal structure and thermoelectric properties of β-pyrochlore-type alkali iron tungsten oxides with cage-like structure", The 34th International Conference on Thermoelectrics / 13th European Conference on Thermoelectrics (ICT/ECT2015), 2015. 6. 28-7. 1, Dresden (Germany).
- 33. Michitaka OHTAKI, "ZnO-based Oxide Thermoelectric Materials: problems solved and unsolved yet", The 11th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (CMCEE-11), 2015. 6. 14-18, Vancouver (Canada).
- 34. Michitaka OHTAKI, "Oxide Materials with Enhanced Phonon Scattering for Thermoelectric Energy Conversion", The 1st International Conference on Microstructure and Property of Materials (MPM-1), 2015. 5. 27-29, Hangzhou (China).
- 35. Michitaka OHTAKI, "Enhanced Phonon Scattering in Nanostructured Oxide Materials", XVI International Forum on Thermoelectricity, 2015. 5. 19-22, Paris (France).
- 36. <u>大瀧倫卓</u>, "酸化物熱電変換材料を用いた 未利用熱回収用発電モジュール", 日本鉄 鋼協会第 169 回春季講演大会, 2015. 3. 18-20, 東京大学駒場キャンパス(東京都渋谷 区)
- 37. Michitaka OHTAKI, Kohei MIZUTA, Yuki IWANO, "New Aspects in Oxide Thermoelectric Materials for Heat-to-Electricity Direct Energy Conversion", The 13th Eurasia Conference on Chemical Sciences (EuAsC<sub>2</sub>S-13), 2014. 12. 14-18, Bangalore (India).
- 38. Michitaka OHTAKI, Yuki IWANO, "Enhanced Phonon Scattering and Carrier Compensation in Multinary-doped ZnO Thermoelectric Oxide", MRS 2014 Fall Meeting & Exhibit, 2014. 11.30-12.4, Massachusetts (USA).
- 39. Michitaka OHTAKI, "Oxide Thermoelectric Materials for Power Generation from Mid-to-High Temperature Unused Heat Energy", The 16th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology (CSS-EEST16), 2014. 11. 13-15, Jeju (Korea).
- 40. 倉垣大河, <u>大瀧倫卓</u>, "ZnO 系酸化物熱電材料の高温安定性", 第 11 回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2014), 2014. 9. 29-30, 物質・材料研究機構 (茨城県つくば市).
- 41. Michitaka OHTAKI, Taiga KURAGAKI, Taketoshi TOMIDA, "High-temperature Durability of doped ZnO on Thermal Cycling under Aerobic Conditions", The 15th IUMRS International Conference in Asia (IUMRS-ICA2014), 2014. 8. 24-30,福岡大学(福岡県福岡市).
- 42. Kohei MIZUTA, Michitaka OHTAKI,

- "Thermal and thermoelectric properties of cage-like structure oxide AB<sub>2</sub>O<sub>6</sub>", The 15th IUMRS International Conference in Asia (IUMRS-ICA2014), 2014. 8. 24-30, 福岡大学七隈キャンパス(福岡県福岡市).
- 43. Michitaka OHTAKI, Kohei MIZUTA, "Enhanced Phonon Scattering in Oxides with "Rattling" Atoms in Oversized Cage Structure", The 33rd International Conference on Thermoelectrics (ICT2014), 2014. 7. 6-10, Nashville (USA).
- 44. Michitaka OHTAKI, Kohei MIZUTA, "Enhanced Phonon Scattering in "Rattling" Oxides for Thermoelectric Energy Conversion", The 6th Forum on New Materials, CIMTEC 2014, 2014. 6. 15-19, Montecatini Terme (Italy).

〔図書〕(計 1 件)

1. <u>Michitaka OHTAKI</u>, Springer International Publishing, USA, "Nanostructured Oxide Thermoelectric Materials with Enhanced Phonon Scattering", in *Oxide Thin Films, Multilayers and Nanocomposites*, Paolo Mele, Tamio Endo, Shunichi Arisawa, Chaoyang Li, Tetsuo Tsuchiya (Eds.), (2015), ISBN 978-3-319-14477-1, Chapter 7, pp. 109-122.

[産業財産権]

○出願状況(計 1 件)

名称:三酸化二チタン質セラミックスバルク 体およびその製造方法

発明者:戸村信雄、篠崎康夫、<u>大瀧倫卓</u>、渡部

権利者:旭硝子(株)、九州大学

種類:特許

番号:特願 2016-511264

出願年月日:平成28年8月26日

国内外の別:国内

- ○取得状況(計 0 件)
- 6. 研究組織

(1)研究代表者

大瀧 倫卓 (OHTAKI, Michitaka)

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号:50223847

(2)研究分担者

渡邊 厚介 (WATANABE, Kosuke)

九州大学・エネルギー基盤技術国際教育研

究センター・助教

研究者番号:40617007