

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03523

研究課題名(和文) 発熱・放熱制御と排熱有効利用を実現する超低消費電力デバイスの計算科学的デザイン

研究課題名(英文) Computational design of high-performance thermoelectric materials and ultra-low power consumption devices

研究代表者

山本 貴博 (Yamamoto, Takahiro)

東京理科大学・工学部教養・准教授

研究者番号：30408695

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、物性物理学と計算物質科学の手法を駆使して、発熱と放熱をナノ構造レベルで制御した超低消費電力デバイスを提案し、そのモデリングと最適化を行った。また、近年更なる挑戦が求められている低温排熱有効利用をターゲットに、新奇な熱電変換機構の創出とハイパフォーマンスな熱電材料の設計を行った。また、熱電効果に対する線形応答理論を構築し、熱電物性分野の学理を深化させた。

研究成果の概要(英文)：In this project, we have theoretically designed several ultra-low power consumption devices in which the heating and heat dissipation are controlled in nanoscale. In addition, we have theoretically developed new materials with high thermoelectric performance at room temperature. In particular, we succeeded to develop a new theoretical scheme of thermoelectric effects based on Kubo linear response theory combined with thermal Green function technique.

研究分野：物性理論、計算物質科学

キーワード：ナノスケール熱制御 ナノ材料 物性理論 計算物質科学

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) デバイスの発熱問題

今日の高度情報化社会を支えるシリコンデバイスの研究開発は今なお目覚ましい発展を続けており、国際半導体技術ロードマップでの電界効果トランジスタ (FET) の研究実績は、版を重ねるたびに前倒しされ続けている。今後においては、微細化・高集積化 (More Moore) の道に進むにせよ、多機能化 (More than Moore) の道に進むにせよ、新規ナノデバイスの開発に“発熱”が“魔の川”として立ちふさがることが必至である。すなわち、次世代のナノデバイスでは、欠陥などのわずかな構造乱れが発熱を引き起こし、せっかくの新物性も熱によって消失しかねない。この問題を克服するためには『原理的に発熱を抑えたデバイス』、『耐熱性に優れた物性機構、素子制御機構』、『放熱性の高いデバイス』などをナノ構造レベルでデザインすることが不可欠であり、これらの課題に理論やシミュレーションによって取り組むことの重要性が10年ほど前から強く認識されるようになった。しかしながらこれまで、ナノ構造レベルで発熱効果を取り入れた量子輸送計算手法の開発が遅れていたために、上記課題への取り組みは世界的に停滞していた。

(2) 排熱有効利用

環境発電の一環として、周辺環境から未利用の熱エネルギーを回収・再利用する排熱有効利用の研究開発が国内外で進行している。高温 (500 以上) での排熱回収は既に市場にあり、中温 (150~500) は実用化フェーズにある。しかし、低温 (150 以下) の排熱回収は進んでおらず基礎科学的研究が求められている。低温の排熱回収にはタービンなどの熱機関が使用できないなどの理由から、電池交換や駆動部のない熱電材料に大きな期待が寄せられている。最近では、熱電変換による自立発電とセンサーネットワークを結びつけたスマートグリッドが検討されるなど、熱電材料への新たなニーズが生まれ、その重要性がリバイバルし始めたところである。

150 以下の低温で熱電変換効率が高い既存材料としては Be-Te 系材料があるが、毒性がある上に衝撃に弱く壊れやすいため、身近な用途には使えない。これらの問題を克服し、低温排熱有効利用を実現するユビキタス熱電材料を創成することが熱電材料開発の命題であるが、それは言うほど容易なことではない。熱電アカデミックロードマップによると、その実現に向けて2020年代前半までを目処に『計算科学材料設計』や『ナノ構造の役割の解明』が掲げられて

いる。このことから分かるように、低温熱電変換材料の創成は材料工学のみならず物性物理学と計算物質科学に課せられた急務の課題である。

2. 研究の目的

次世代デバイス開発においては、微細化・高集積化 (More Moore) においても、多機能化 (More than Moore) においても発熱問題は克服すべき重要課題である。本研究では、物性物理学と計算物質科学の手法を駆使して、発熱・放熱をナノ構造レベルで制御した超低消費電力デバイスを提案し、そのモデリングと最適化を行う。また、近年更なる挑戦が求められている低温排熱有効利用をターゲットに、新奇な熱電変換機構の創出とハイパフォーマンスな熱電材料の設計を行う。

3. 研究の方法

本研究は期間内 (3年) に、『ナノ構造レベルで発熱・放熱制御されたナノデバイスの創成』と『新奇な熱電変換機構の探索と低温熱電発電を実現するナノ材料の創成』の2つの項目を実施する。初年度はいずれの項目ともに基礎物性データを整備し、ナノ材料に固有の新物性機構を探索する。2年目以降は、新物性機構の探索を継続すると共に、発熱・放熱を制御したナノデバイスと低温熱電発電を実現する熱電材料をデザインする。山本と分担者 (1名) と連携研究者 (2名) は、月に1度のペースで face-to-face な議論を行うことを計画している。本研究は理論研究であるが、得られた成果は速やかに関連実験グループに情報提供・還元する。

4. 研究成果

(項目1) ナノ構造レベルで発熱・放熱制御されたナノデバイスの創成

平成27年度には、有限温度での原子振動 (フォノン) の影響を考慮に入れた電子輸送シミュレータを世界に先駆けて開発し、次世代 LSI の配線材料として注目されている金属カーボンナノチューブに応用した。金属カーボンナノチューブに対して、量子バリステック伝導から古典オーミック伝導までの電子輸送特性を系統的に調査した。また、グラフェンの歪誘起擬似磁場効果を利用した電流スイッチング素子表記の素子において、電子-フォノン散乱の影響を考慮に入れるためのシミュレーションプログラムの拡張を行った。それを用いて、グラフェン自身のフォノンが素子性能に与える影響を解析した。また、これまではアームチェア軸方向の歪みのみに焦点を当ててきたが、より一般の方向の歪みの影響を解析するための理論構築を行った。さらに、グラフェンのエッジ効果と量子ポンプ効果を活用したスピン流素子を純粋スピン流生成

モジュールとして用いるため、モジュールであるスピン偏極したジグザグ端グラフェンナノリボン (ZGNR) がスピン偏極していないZGNR リードにつながっている場合でもスピン流の生成が可能であることを確認した。

平成 28 年度には、グラフェンの引張に対する熱物性の変調について、第一原理計算により調べた。グラフェンを引張ることにより、フォノン分散関係が大きく変化することを見出し、その結果、比熱の低温での温度依存性が線形から放物型に変化することがわかった。また、グラフェンの歪み誘起擬似磁場効果を利用した電界効果型トランジスタの特性をより詳細に明らかにするため、非平衡グリーン関数法に加え、時間依存波束伝播法を用いたシミュレーションをも用いる事により、歪みグラフェンにおける電子伝播の視覚的理解を推し進めた。歪みの不均一性が電子伝播に与える影響についても系統的に明らかにした。

平成 29 年度には、カーボンナノチューブの平均自由行程と位相緩和長の温度依存性を独自の計算機シミュレーション手法を駆使して明らかにした。特に、欠陥による散乱効果とフォノンの両方が平均自由行程と位相緩和長に及ぼす影響を調査し、カーボンナノチューブの長さに応じてパリスティック伝導領域、弱局在領域、拡散的オーミック伝導領域のクロスオーバー現象を見出すことに成功した。さらに、グラフェンへの歪み印加が電子移動度に与える影響について、電子フォノン相互作用を考慮する事により調査した。その結果、引っ張り歪みの増加に従い移動度が非線形に低下し、10%程度の引っ張り歪みで移動度が無歪み時の 1/6 程度に低下するが、中刷りグラフェンの場合それでも尚 10,000cm²/Vs 程度の高移動度が期待できる事が明らかとなった。また、グラフェンと六方晶窒化ホウ素 h-BN との複合材料 h-BCN をチャネル材料とした FET の特性について理論解析を行った。その結果、B:N:C の比率を 1:1:6 とした場合にシリコンと同程度のバンドギャップが得られ、電流の十分なオンオフ比が期待できる事を示した。

(項目 2) 新奇な熱電変換機構の探索と低温熱電発電を実現するナノ材料の創成

平成 27 年度には、ナノカーボン材料、有機材料、シリサイド材料の熱電物性を調査し、それらの基礎物性データベースを構築した。特に、グラフェンナノリボンの熱電物性に及ぼすエッジラフネスの影響を詳細かつ系統的に調べ、エッジ構造とリボン長を制御することで熱電パフォーマンスを最適化し得ることを発見し、様々なエッジラフネス濃度に対して熱電パフォーマンスを最適化するリボン長を明らかにした。

平成 28 年度には、多層黒リンの機械的な引張変形に対する熱電特性の変化について、第一原理計算により調べた。その結果、引張に応じて熱電パワーファクターが増大することがわかった。また、久保理論に基づく線形応答理論を用いて、不純物ドーパされたカーボンナノチューブの熱電物性を評価し、最適なキャリアドーパ量を見積もることに成功した。熱電特性の最適化には、適切な量のキャリアドーパが必要である。本研究では、フレキシブル熱電材料と有機強誘電材料のハイブリッド構造を創ることで、分極効果により熱電材料へキャリアを注入できることを計算機シミュレーションにより定量評価し、実験グループと連携することで、実験的に検証も行った。

平成 29 年度には、カーボンナノチューブ薄膜の両極性熱電効果を、線形応答理論と温度グリーン関数法に基づく熱電理論によって明らかにした。また本項目では、グラフェンと強誘電材料のハイブリッド構造を創ることで、分極効果によりグラフェンへキャリアを注入できることを計算機シミュレーションにより定量評価し、その熱電効果について実験グループと連携して実験的検証も行った。そこでは、グラフェンの層数に依存して本質的に熱電物性が変調されることを見出した。

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 16 件)

1. Takahiro Yamamoto, Hidetoshi Fukuyama, Journal of the Physical Society of Japan 87, 024707-1 ~ 11 (2018) [査読有].
2. Keisuke Ishizeki, Kenji Sasaoka, Satoru Konabe, Satofumi Souma, Takahiro Yamamoto, Physical Review B 96, 035428-1 ~ 8 (2017) [査読有].
3. Takuya Kokabu, Kengo Takashima, Shuhei Inoue, Yukihiko Matsumura, Takahiro Yamamoto, Journal of Applied Physics 122, 015308-1 ~ 6 (2017) [査読有].
4. Hideki Hirai, Matsuto Ogawa and Satofumi Souma, Proc. of International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD) 219 ~ 212 (2017) [査読有].

5. Satofumi Souma, Takashi Akiyama, Kenji Sasaoka and Matsuto Ogawa, Proc. of International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD) 213 ~ 216 (2017) [査読有].
 6. Tetsumi Izawa, Kengo Takashima, Satoru Konabe and Takahiro Yamamoto, Synthetic Metals 225, 98-102 (2017) [査読有].
 7. Kento Tada, Takashi Funatani, Satoru Konabe, Kenji Sasaoka, Matsuto Ogawa, Satofumi Souma and Takahiro Yamamoto, Jpn. J. Appl. Phys. 56, 025102 (2017) [査読有].
 8. Daisuke Hayashi, Yusuke Nakai, Haruka Kyakuno, Takahiro Yamamoto, Yasumitsu Miyata, Kazuhiro Yanagi, and Yutaka Maniwa, Appl. Phys. Express 9, 025102 (2017) [査読有].
 9. Yu Kobayashi, Shoji Yoshida, Ryuji Sakurada, Kengo Takashima, Takahiro Yamamoto, Tetsuki Saito, Satoru Konabe, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Yutaka Maniwa, Osamu Takeuchi, Hidemi Shigekawa, Scientific Reports 6, 31223 (2016) [査読有].
 10. Kengo Takashima, Satoru Konabe, and Takahiro Yamamoto, Surf. Interface Anal. 48, 1214-1216 (2016) [査読有].
 11. Satoru Konabe, Shiro Kawabata, and Takahiro Yamamoto, Surf. Interface Anal. 48, 1231-1234 (2016) [査読有].
 12. Tetsumi Izawa, Kengo Takashima, and Takahiro Yamamoto, Surf. Interface Anal. 48, 1210-1213 (2016) [査読有].
 13. 井澤哲美, 高島健悟, 山本貴博, 表面科学 Vol.37, No. 8, 348-353 (2016) [査読有].
 14. Daisuke Hayashi, Tomohiro Ueda, Yusuke Nakai, Haruka Kyakuno, Yasumitsu Miyata, Takahiro Yamamoto, Takeshi Saito, Kenji Hata, and Yutaka Maniwa, Applied Physics Express 9, 25102-25102 (2016) [査読有].
 15. Kengo Takashima, Satoru Konabe, and Takahiro Yamamoto, Journal of Applied Physics 119, 24301-24301 (2016) [査読有].
 16. 相馬聡文, 田中未来, 市原圭祐, 迫田翔太郎, 笹岡健二, 小川真人, 信学技報 IEICE Technical Report, SDM2015-89, 29-34 (2015) [査読有].
- [学会発表] (計 146 件)
1. 山本貴博, 熱電材料としてのカーボンナノチューブ電気通信大学ナノトライポロジー研究センター第二回シンポジウム「物性科学から工学へ」(2018) [招待講演].
 2. 山本貴博, 福山秀敏, ゼーベック係数の線形応答理論とその応用 -Beyond Boltzmann, 東北大学金属材料研究所共同利用・共同研究ワークショップ「多自由度・多階層性が協奏する物質材料システムの科学」(2017) [招待講演].
 3. 山本貴博, 熱電変換材料としてのカーボンナノチューブ ~理論研究を中心に~, 日本学術振興会「炭素材料第117委員会」第324回研究会 (2017) [招待講演].
 4. 山本貴博, 熱電変換材料としてのカーボンナノチューブ, 日本学術振興会「先端ナノデバイス・材料テクノロジー第151委員会」平成29年度第4回研究会「ナノ構造体材料のエネルギーデバイス応用」(2017) [招待講演].
 5. 山本貴博, 低次元ナノ構造の伝熱と熱電物性, 2015年真空・表面科学合同講演会(2015) [招待講演].
- 他 141 件

〔図書〕（計 2 件）

1. 基礎からの物理学（裳華房, 2016）山本貴博 著
2. Nanoscale Energy Transport and Harvesting: A Computational Study (Pan Stanford Publishing, 2015) Takahiro Yamamoto, Kenji Sasaoka, Satoshi Watanabe

〔産業財産権〕

出願状況（計 2 件）

1. 名称：熱電物性測定装置及び熱電物性測定方法
発明者：中嶋宇史、山本貴博、福山秀敏、橋爪洋一郎
権利者：同上
種類：特許
番号：特願 2017-142754
出願年月日：2017 年 7 月 24 日
国内外の別：国内
2. 名称：半導体材料、導電性層にキャリアを生じさせる方法、及び熱電変換素子
発明者：山本貴博、中嶋宇史、阿武宏明、小鍋哲
権利者：同上
種類：特許
番号：特願 2015-205044
出願年月日：2015 年 10 月 16 日
国内外の別：国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

山本 貴博 (YAMAMOTO, Takahiro)

東京理科大学・工学部・准教授

研究者番号：30408695

(2)研究分担者

相馬 聡文 (SOUMA, Satofumi)

神戸大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：20432560

(3)連携研究者

笹岡 健二 (SASAOKA, Kenji)

東京理科大学・総合研究院・助教

研究者番号：

(4)連携研究者

小鍋 哲 (KONABE, Satoru)

東京理科大学・総合研究院・講師

研究者番号：40535506