

未来社会創造事業 大規模プロジェクト型  
年次報告書

令和元年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：森 孝雄]

[国立研究開発法人物質・材料研究機構国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点・副拠点長]

[研究開発課題名：磁性を活用した革新的熱電材料・デバイスの開発]

実施期間：令和4年4月1日～令和5年3月31日

## §1. 研究開発実施体制

### (1)「森」グループ(物質・材料研究機構)

① 研究開発代表者: 森 孝雄 (物質・材料研究機構国際ナノアーキテクトニクス研究拠点、グループリーダー)

#### ② 研究項目

- ・超高性能薄膜の磁性との相関解明
- ・超高性能熱電薄膜の開発(n型制御、p型開発、作製条件制御)
- ・磁性半導体熱電薄膜の開発
- ・高性能磁性半導体バルク熱電材料の開発
- ・高性能ナノ構造バルク熱電材料の開発
- ・TD-TRによる薄膜熱評価技術の開発
- ・モジュールの作製へ向けた基礎プロセス開発

### (2)「パワー」グループ(ウィーン工科大学)

① 主たる共同研究者: エルンスト パウアー (ウィーン工科大学固体物理研究所、教授)

#### ② 研究項目

- ・超高性能熱電薄膜の開発(n型制御、p型開発、作製条件制御)

### (3)「小林」グループ(筑波大学)

① 主たる共同研究者: 小林 伸彦 (筑波大学数理物質系、教授)

#### ② 研究項目

- ・磁性イオンドーピングおよびナノ構造・薄膜増強効果による理論設計

### (4)「小形」グループ(東京大学)

① 主たる共同研究者: 小形 正男 (東京大学大学院・理学系研究科、教授)

#### ② 研究項目

- ・磁性による熱電特性の増強に関する理論的な機構解明、マテリアルデザイン

### (5)「野村」グループ(東京大学生産技術研究所)

① 主たる共同研究者: 野村 政宏 (東京大学生産技術研究所、准教授)

#### ② 研究項目

- ・フォノンの平均自由行程スペクトル測定および解析法の検討
- ・平面型熱電変換デバイスの構造最適化シミュレーションの作成

### (6)「ゴルバーク」グループ(物質・材料研究機構)

① 研究開発代表者: ゴルバーク ドミトリ (物質・材料研究機構、グループリーダー)

#### ② 研究項目

- ・熱電薄膜や熱電薄膜実デバイスに活用できる TEM 内熱評価技術の開発

(7)「飯田」グループ(東京理科大学)

① 主たる共同研究者:飯田 努 (東京理科大学基礎工学部、教授)

② 研究項目

- ・熱源からの熱流量と導引最高温度を制御して熱発電モジュールに接合する熱交換・熱伝達機構技術
- ・IoT 用途 GaN スイッチング DC-DC コンバータを内装する熱発電モジュール基板構造開発

(8)「塩見」グループ(東京大学)

① 研究開発代表者:塩見 淳一郎 (東京大学大学院工学系研究科、教授)

② 研究項目

- ・モジュールの冷却側の伝熱制御技術の開発

(9)「宮崎」グループ(九州工業大学)

① 研究開発代表者:宮崎 康次 (九州工業大学工学研究院、教授)

② 研究項目

- ・印刷技術の開発
- ・混合材料の評価

(10)「竹内」グループ(豊田工業大学)

① 研究開発代表者:竹内 恒博 (豊田工業大学大学院工学研究科、教授)

② 研究項目

- ・熱電モジュールの新規デザイン

(11)「李」グループ(産業技術総合研究所)

① 主たる共同研究者:李 哲虎 (産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門、首席研究員)

② 研究項目

- ・バルク熱電モジュールの試作
- ・熱電モジュールの評価

(12)「麻原」グループ(岡山理科大学)

① 主たる共同研究者:麻原 寛之 (岡山理科大学工学部、准教授)

② 研究項目

- ・熱電デバイス用電力変換回路の設計

(13)「櫻井」グループ(筑波大学)

① 主たる共同研究者:櫻井 岳暁 (筑波大学数理物質系、教授)

② 研究項目

- ・半導体薄膜型熱電材料の欠陥評価とプロセスフィードバック

#### (14) (ネッチジャパン G)

① 主たる共同研究者：篠田 嘉雄(ネッチジャパン株式会社、代表取締役社長)

#### ② 研究項目

・熱電厚膜・薄板の熱物性測定技術の開発

## § 2. 研究開発成果の概要

本課題では、パラマグノンドラグなどの磁性を活用した熱電増強新原理やナノ構造制御および薄膜効果を活用することにより、IoT 動作電源などの実用化に資する熱電材料の原理実証・材料開発、および、産業プロセスに適したモジュール化やモジュールの要素技術の開発に取り組んでいる。令和 4 年度に関しては、下記のような研究進展が得られた。

ホイスラー $\text{Fe}_2\text{VAI}$  系の超高性能薄膜に関しては、ドーピングや成膜条件制御により、より幅広い温度域で巨大な性能指数を実現できた。去年度作製に成功したn型の対となる、p型の超高性能薄膜の性能の起源解明も進んだ。こうしたホイスラー $\text{Fe}_2\text{VAI}$  系および  $\text{Mg}_2\text{Sn}$  系薄膜に関して、薄膜型の熱電発電デバイスの作製プロセスの開発が進み、最初のプロトタイプの作製に成功した。

アンダーソン局在を活用した高性能化効果も実証して、極めて高い出力因子を実現するとともに、弱局在を対象に線形応答理論を用いて熱電応答係数の解析を行った。磁性が関与したゼーベック係数に関する反強磁性マグノンドラグの理論的理解が進んだ。熱電材料における界面や欠陥などの微細構造近傍における TEM を活用した局所的な熱輸送評価に向けて、モデル試料における定量的な熱拡散率の評価が可能になった。発電デバイスに使用している  $\text{Mg}_2\text{Sn}$  系薄膜に関して陽電子消滅法による欠陥の解析を進め、熱電特性を向上させていた起源を解明した。一方で、デバイス要素技術である新規ヒートシンクの開発に向けて、吸着・脱着現象の影響を考慮した3次元数値計算を実施した。その結果、自然対流条件下での熱伝達率を  $100\text{W}/\text{m}^2\text{K}$  近くまで大幅に向上させることに成功した。また、伝熱促進効果の持続性を念頭にハイドロゲルの実装も行った結果、熱伝導率はMOF コーティングに劣るものの、長時間(24時間)伝熱促進を持続させられることを示した。熱電モジュールの発電性能を室温以下で測定する評価システムも開発した。来たる水素社会では冷熱源が活用できる可能性があり、低温領域で動作する熱電モジュールも必要となる。そこで、熱電モジュールの発電性能を低温領域で評価するシステムを開発し、温度差  $100\text{K}$  以下の範囲で精度良く評価できることを確認した。

本プロジェクトで開発した、半世紀チャンピオンとして君臨した  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  系材料の最高性能モジュールに匹敵・凌駕する新規材料をはじめとするオリジナル材料に関して、上記の薄膜型デバイスに加えて、塗布型膜など種々の形態の発電モジュールでの試作活用・評価が本格化した。

### 【代表的な原著論文情報】

1. Fabian Garmroudi, Michael Parzer, Alexander Riss, Andrei Ruban, Sergii Khmelevskiy, Michele Reticcioli, Matthias Knopf, Herwig Michor, Andrej Pustogow, Takao Mori, and Ernst Bauer, "Anderson transition in stoichiometric  $\text{Fe}_2\text{VAI}$ : High thermoelectric performance from impurity bands", Nature Communications, 13, 3599 (2022).
2. I. Ohkubo and T. Mori, "Rational Design of 3d Transition-Metal Compounds for Thermoelectric Properties by Using Periodic Trends in Electron-Correlation Modulation", Journal of the American Chemical Society, 144, 8, 3590–3602 (2022).

3. Isao Ohkubo, Masayuki Murata, Mariana S. L. Lima, Takeaki Sakurai, Yuko Sugai, Akihiko Ohi, Takashi Aizawa, Tetsuya Baba, and Takao Mori, “Miniaturized in-plane  $\pi$ -type thermoelectric device composed of a II–IV semiconductor thin film prepared by microfabrication”, *Materials Today Energy*, 28, 101075 (2022).

(令和4年4月に発表されたが、前年度の報告書で詳述したので、論文発表は今年度の成果であるが上記に入れなかったこととする。Z. Liu, W. Gao, H. Oshima, K. Nagase, C. H. Lee, and T. Mori, “Maximizing the Performance of n-Type Mg<sub>3</sub>Bi<sub>2</sub> Based Materials for Room-Temperature Power Generation and Thermoelectric Cooling”, *Nature Commun.* 13, 1120 (2022).)。