

《様式B》

研究テーマ 「配向カーボンナノチューブ薄膜を用いた柔軟・透明なフィルム状熱電変換材料の開発」

研究責任者 所属機関名 名古屋工業大学

官職又は役職 准教授

氏名 岸直希 メールアドレス kishi.naoki@nitech.ac.jp

共同研究者 所属機関名

官職又は役職

氏名

(平成 29 年度募集) 第 30 回 助成研究 完了報告書

## 1. 実施内容および成果ならびに今後予想される効果の概要

本研究は、温度差から発電する熱電発電に用いる熱電変換材料についての研究である。熱電変換材料としては、無機半導体材料が高い特性を示すことが知られており研究の主流となっている。一方で、炭素系材料や有機系材料の熱電変換材料としての応用も近年注目されている。これらの材料は耐屈曲性が高く柔軟であることが特徴であり、例えば局面などへの素子の設置が期待できる。我々は柔軟性に加えて透明性も併せ持つ熱電変換材料の研究を進めている。熱電変換材料に透明性も加わることにより、設置する場所にさらなる自由度が増え、新たな用途の開発が可能と考えている。本助成研究では、炭素系材料であるカーボンナノチューブの柔軟・透明な熱電変換材料としての応用を検討した。1年間の研究で、我々が進めている分散材レスバーコーティング法によるカーボンナノチューブ薄膜の作製についてさらなる成膜条件の最適化を図り、さらに最適条件により作製したカーボンナノチューブ薄膜の熱電変換特性の評価を行った。なお、本助成研究により得られた成果について、特許の出願を1件行った。

## 2. 実施内容および成果の説明

### 研究背景・内容

温度差から発電する熱電発電が注目されている。熱電発電を実現する熱電変換材料としては無機半導体を用いることが主流であり、例えば  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  系の材料において高い熱電変換特性が得られることが知られている。一方で、近年では有機系材料や炭素系材料の熱電変換材料として応用も注目されている。これらの材料は柔軟であることが特徴であり、例えば曲面などへの設置が期待できる。我々は、柔軟であることに追加して透明という特性も併せ持つ熱電変換材料の研究を進めており、本助成研究では、炭素系材料であるカーボンナノチューブの柔軟・透明な熱電変換材料としての応用を検討した。層が1層の単層カーボンナノチューブは典型的には太さ1-2nm、長さ数  $\mu\text{m}$  程度の炭素だけからなる筒状の物質であり、熱電変換素子に応用するためには、薄膜状の集合体（カーボンナノチューブ薄膜）を形成する必要がある。我々はカーボンナノチューブ薄膜の作製手法として分散剤を含まないカーボンナノチューブ分散液を用いたバーコーティング法の研究を行っているが、熱電変換材料としての応用を目指す上で、成膜条件の更なる検討が必要であった。本助成研究では、1年間の研究として、単層カーボンナノチューブ薄膜の成膜における最適な分散液粘度の検討、および作製した単層カーボンナノチューブ薄膜の熱電特性評価を行った。

### 研究成果

分散材レスバーコーティング法による単層カーボンナノチューブ成膜における、分散液の粘度に対する依存性を検討した。結果としては、分散液粘度が成膜の均一性に対し重要であることが明らかとなった。分散剤を含まない単層カーボンナノ






					
濃度	0.15 %	0.2 %	0.25 %	0.30 %	0.32 %

図1 単層カーボンナノチューブ薄膜の分散液濃度依存性

チューブ分散液を作製し、バーコーティング法により単層カーボンナノチューブ薄膜を成膜した。分散液に含まれる単層カーボンナノチューブ濃度を0.15~0.32%とした時の成膜後のサンプルの写真を図1に示す。図1より、濃度が0.2%までは基板上で部分的に集まり均一な薄膜となっていないことがわかる。一方で0.25%以上の濃度では全面に薄膜を得ることができていることが確認でき、成膜性が分散液の濃度に依存することがわかる。

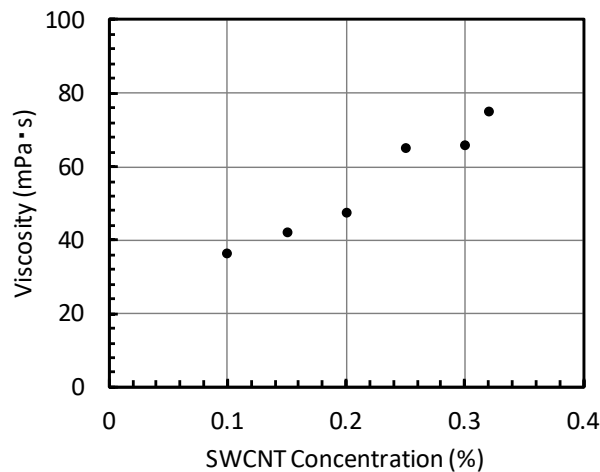


図2 単層カーボンナノチューブ分散液の粘度の濃度依存性

図2に分散液の粘度の単層カーボンナノチューブ濃度依存性を示す。分散液の粘度はナノチューブ濃度に依存して増加することがわかり、また本実験の作製条件では最大で濃度0.32%で粘度74mPa·sの値が得られた。図1より濃度0.25%以上において全面に単層カーボンナノチューブ薄膜が得られ、また分散液の粘度が単層カーボンナノチューブ濃度に依存することから、次のような成膜のメカニズムを考えた。図3に分散液の粘度が低い場合の形成過程を示す。バーコーティング法により分散液を基板上に広げ塗布した後、分散液は表面張力により分散液が集まろうとする。それに対し粘性により分散液はその場にとどまろうとするが、粘度が低い場合は時間が経過すると基板上で分散液が集まり、全面の薄膜形成が起こらず部分的な薄膜が得られるのみである。それに対し、粘度が高い場合は分散液が基板上に広げられた後も粘性によりその場にとどまり、基板上の全面に単層カーボンナノチューブ薄膜が形成されると思われる。

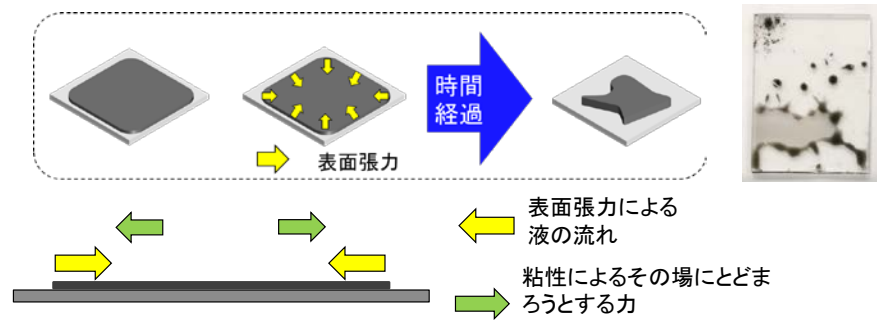


図 3 分散材レスバーコーティング法によるカーボンナノチューブ薄膜形成過程（分散液粘度が低い場合）

作製した単層カーボンナノチューブ薄膜の熱電変換特性の評価を行った。最適な条件にて成膜した単層カーボンナノチューブ薄膜の熱起電力測定を行ったところ 1K あたり  $20\ \mu\text{V}$  程度の起電力が得られた。今後は、本助成研究により得られた成果を基に、単層カーボンナノチューブ薄膜を用いた熱電変換素子・モジュール作製プロセスの研究へと展開し、特性の高い柔軟・透明な熱電変換デバイスの実現を目指す。