

低温排熱利用を目的とした グラフェン膜の熱電特性の検討

SATテクノロジー・ショーケース2020

■ 背景

我が国の排熱の約 42%は 200°C以下の熱であり、この低温域の排熱回収はほとんど進んでいない。これらの熱をエネルギーとして利用するために低温域作動の熱電変換材料が必要とされている。しかし、これまで熱電発電に用いられてきたのは Bi-Te 系などの無機材料であり、希少で高価、フレキシブル性に欠ける等の課題がある。そこで、新しい熱電材料として室温付近でも高い電子移動度を示すグラフェンに着目した。グラフェンは炭素で構成されるため安価で軽量であり、フレキシブル性も高く大面積デバイスの作製に適している。熱電デバイスは p 型、n 型半導体を交互に繋ぐことで性能が向上する。グラフェンは通常、大気中で p 型を示す。一方、グラフェンでの安定した n 型の実現は報告例が少ない。

本研究では、プラズマ CVD で高スループットで合成した高品質グラフェンの熱電特性の評価を行うとともに、n 型グラフェンの作成手法の検討として 2 層グラフェンにカリウム(K)のインターカレーションを行うことによるキャリアドーピングを試みた。

■ 研究内容

1. グラフェンの合成及び転写

プラズマCVDを用いて銅箔上に2層グラフェンを合成した。次に、銅箔をエッチングしてPET基板にグラフェンを転写した。また、転写を繰り返すことで最大20層のグラフェンを作製した。グラフェンの層数はヘーズメーター（日本電色工業製、NDH5000）を用いて測定した透過率より算出した。

2. グラフェンの熱電特性評価

2層、20層グラフェンのゼーベック係数及び電気伝導度を熱電特性評価装置(ADVANCE RIKO製、ZEM-3)で測定した(図1)。2層グラフェンで試料温度が376 Kのときゼーベック係数70 $\mu\text{V}/\text{K}$ を示し、 PF は2.96 mW/mk^2 を得られた。これは、報告されているCNT系熱電材料と比較して高い値が得られた¹⁾。層数の増加は電気伝導度の向上に寄与するが、ゼーベック係数には変化を与えなかった。また、ゼーベック係数の符号から作製したグラフェンはp型であることが分かった。

3. 2層グラフェンのカリウム(K)インターカレーション

グラフェンにキャリアドーピング(電子)を行うため、Kのインターカレーションを行った。基板は SiO_2/Si を用い、グラフェンを基板に転写する工程の直前で20 mol%のKOH溶液に20分間浸潤した²⁾。その後、SEM及びEDXでKOH処理した2層グラフェンの評価を行った(図2)。その結果、KOH浸潤によりドーピングが行われていることを示唆する結果が得られた。今後は、Ca、Cs等の新規インターカレーション原子の検討、FETを用いた4端子法により p n 判定を行う。

■ 関連情報等(特許関係、施設)

○謝辞

本研究は産業技術総合研究所 ナノ材料研究部門 炭素薄膜材料グループと共同で行われた。

○文献

- 1) 石田敬雄; エネルギーハーベスティングを旨とした有機系熱電材料, 表面技術, 67 巻 7 号, p344-347 (2016)
- 2) T. Yamada, Y. Okigawa, M. Hasegawa, Potassium-doped n-type bilayer graphene, Appl. Phys. Lett. 112, 04310 5 (2018)

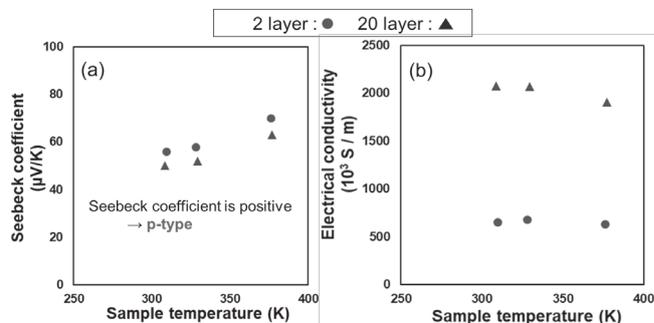


図1 2層, 20層グラフェンの熱電特性
(a)ゼーベック係数, (b)電気伝導度

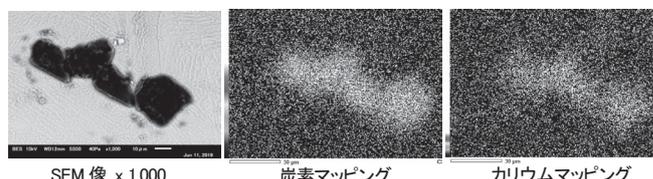


図2 KOH 処理した 2 層グラフェンの SEM
及び EDX マッピング画像

代表発表者 木原 純平(きはら じゅんぺい)
所属 千葉工業大学大学院 工学研究科
生命環境科学専攻 生活圏環境研究室
問合せ先 〒275-0061 千葉県習志野市津田沼 2-17-1
TEL: 047-478-0418
s1523079yg@s.chibakoudai.jp

■キーワード: (1) グラフェン
(2) 熱電発電
(3) インターカレーション
■共同研究者: 石原 正統¹⁾, 沖川 侑暉¹⁾
小浦 節子²⁾
1) 産業技術総合研究所
2) 千葉工業大学