



Title	非放物線バンドを利用した透明薄膜熱電材料の熱電性能向上に関する研究
Author(s)	小松原, 祐樹
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/101704
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (小松原 祐樹)	
論文題名	非放物線バンドを利用した透明薄膜熱電材料の熱電性能向上に関する研究
<p>IoTセンサ用電源の実現に向け、身の周りの低温廃熱を電気に直接変換可能な薄膜熱電材料が注目されている。従来では体温、電子機器等での応用が注目されてきたが、本論文ではビルの窓ガラス等の透明材料への応用を見据え、透明薄膜熱電材料に注目した。熱電性能は無次元性能指数$zT=S^2\sigma T\kappa^{-1}$ (S: ゼーベック係数、σ: 電気伝導率、κ: 熱伝導率、T: 絶対温度) で表され、透明熱電材料には高zTと可視光領域における高光透過率が求められる。中でもユビキタス元素の酸化亜鉛 (ZnO) は産業利用に適しているが、ZnOは高κと低$S^2\sigma$を有するため応用には程遠い。κ低減はナノ構造導入により実現可能である。一方、$S^2\sigma$増大には有効質量の増大が効果的であるが、ZnOにおいては有効質量が小さいため、低い$S^2\sigma$にとどまる。</p> <p>本論文では、ZnOが有する非放物線バンドに着目し、バンドの非放物線性を増大することで有効質量を増大し、これを用いた熱電性能向上の新方法論を構築することを目指した。まず、薄膜ヘテロ界面の応力場を用いてドナー型点欠陥を導入し、ドナー型点欠陥準位と伝導帯の混成によりバンドの非放物線性を増大し、有効質量増大を実証した。これにより、$S^2\sigma$を3倍向上させた。次に、この薄膜にZnOナノワイヤを導入したナノ構造薄膜を作製し、界面フォノン散乱促進による低κと高$S^2\sigma$を同時に実現し、面内$zT\sim 0.1$を達成した。また、ナノ構造薄膜における性能向上機構の詳細を知るため、SPMを用いた局所特性の微視的観察を行った。その結果、性能向上が、ZnOナノワイヤ界面から成長した領域における高Sと低κに由来することがわかった。最後に、高$S^2\sigma$を有するナノ構造薄膜の簡易デバイスを作製し、従来のZnO系薄膜デバイスより高い出力密度を獲得した ($0.44 \mu\text{Wcm}^{-2}\text{K}^{-2}$)。</p> <p>本論文では、非放物線バンドを利用した応力場によるドナー型点欠陥制御による$S^2\sigma$増大、ナノ構造によるκ低減を実現し、透明薄膜熱電デバイスの実現の可能性を示した。</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (小松原 祐樹)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教 授	中村 芳明
	副 査	教 授	酒井 朗
	副 査	教 授	浜屋 宏平
	副 査	教 授	森 伸也 (工学研究科)

論文審査の結果の要旨

IoT社会の発展に伴い、センサ用電源として薄膜熱電材料が期待されている。本論文では窓ガラス等の透明材料への展開を狙って、透明薄膜熱電材料に注目している。しかし、熱電性能を表す無次元性能指数 $zT=S^2\sigma T\kappa^{-1}$ (S :ゼーバック係数、 σ :電気伝導率、 κ :熱伝導率、 T :絶対温度)の室温近傍での値は低く、透明熱電材料の低 κ 化と高 $S^2\sigma$ 化が必要であるという課題がある。

本論文では、酸化亜鉛 (ZnO) 薄膜の高性能化を目指し、非放物線バンドを利用した有効質量の増大による高 $S^2\sigma$ 化と、ナノ構造導入による低 κ 化に着目している。具体的には、①非放物線性制御が可能となりうるドナー型点欠陥に着目し、応力場を利用することでドナー型点欠陥を薄膜中へ導入し、高 $S^2\sigma$ 化を狙っている。また、②ナノ構造界面を利用した応力場制御により、高 $S^2\sigma$ 化と低 κ 化の同時実現も狙っている。さらに、③透明熱電材料の高性能化に向け、SPMを用いた局所特性の微視的観察を行い、ナノ構造薄膜における性能向上を検証している。

まず①では、薄膜ヘテロ界面の応力場を用いてドナー型点欠陥を導入し、従来より3倍高い $S^2\sigma$ を実現している。次に②では、上記薄膜にZnOナノワイヤを導入したナノ構造薄膜を作製し、高 $S^2\sigma$ 化と低 κ 化を同時実現し、室温で高い面内 $zT\sim 0.1$ を達成している。また③では、ナノ構造薄膜における性能向上が、ZnOナノワイヤから横成長した領域における高 S と低 κ に由来することを明らかにしている。さらに、上記のナノ構造薄膜を用いて作製した簡易デバイスにおいては、従来のZnO系薄膜デバイスより高い出力密度を獲得している ($0.44\text{ }\mu\text{Wcm}^{-2}\text{K}^{-2}$)。以上の結果から、本論文において、非放物線バンドを利用した有効質量の増大による高 $S^2\sigma$ 化と、ナノ構造導入による低 κ 化が実現され、これらが熱電性能向上に有効であることが実証された。

以上のように、本論文は非放物線バンドの利用による熱電特性制御を実証し、新たな性能向上の指針を示したものであり、博士 (工学) の学位論文として価値のあるものと認める。