The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

| | |
|---|---|
| Title | Study of thermoelectric properties of Heusler alloys |
| Author(s) | 川原田, 義幸 |
| Citation | 大阪大学, 2004, 博士論文 |
| Version Type | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/44879 |
| rights | |
| Note | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>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

| | |
|---|---|
| 氏　　名 | 川原田　義　幸（かわはらだ　よし　ゆき） |
| 博士の専攻分野の名称 | 博　士（工　学） |
| 学　位　記　番　号 | 第　１８７３５　号 |
| 学位授与年月日 | 平成 16 年 3 月 25 日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第４条第１項該当<br>工学研究科原子力工学専攻 |
| 学　位　論　文　名 | Study of thermoelectric properties of Heusler alloys<br>（ホイスラー合金における熱電変換特性に関する研究） |
| 論　文　審　査　委　員 | （主査）<br>教　授　山中　伸介<br>（副査）<br>教　授　西嶋　茂宏　　助教授　山本　孝夫　　助教授　宇埜　正美 |


## 論　文　内　容　の　要　旨

本論文は、高温におけるホイスラー合金の熱電変換特性を評価するとともに、元素置換による熱電変換性能の向上を目的としている。本論文は以下の四章から構成されている。

第一章では、導入部として本研究の背景と目的について述べている。世界的に急増する電力需要とそれに伴う地球温暖化の防止に向けた国際的な取組みの中で、現有電力源の効率的利用の必要性について述べ、現在および将来にわたって発電施設に求められる技術的な課題の解決策のひとつとして熱電変換材料の利用が世界的に注目されていることを述べ、高性能熱電変換材料の開発の必要性を指摘している。

第二章では、ホイスラー合金の熱電変換特性に及ぼす元素置換効果について述べている。各種ホイスラー合金に対し、以下の点に関して実験的に評価を行っている。(1)標準四端子法を用いて電気的特性を実験的に評価し、$Fe_{3-x}V_xAl$ 系化合物においては元素置換に伴い熱起電能が p 型から n 型に変化することが報告されている。この変化を利用することにより、p・n 両型において高い出力因子を持つ熱電変換材料を作製できる可能性を指摘している。(2)トリプルセル示差熱分析装置・レーザーフラッシュ熱定数測定装置を用いて熱伝導率を実験的に測定し、各材料の熱伝導率は置換元素量・元素種に強く依存し、元素置換により格子熱伝導率は低減することが示されている。(3)ハーフホイスラー化合物においては遷移金属・半金属両サイトを置換すると熱電変換性能が向上することが示されている。

第三章では、第一原理分子軌道法を用いた量子化学計算によって第二章で実験的に得られた各種材料における熱電変換特性の元素置換効果を解析している。電子状態計算に基づき(1)ホイスラー化合物における擬ギャップの生成のメカニズム(2)$Fe_{3-x}V_xAl$ における主要キャリア変化の理由(3)$Fe_{3-x}V_xAl$ における V 置換量増加に伴う格子定数減少の原因(4)各ホイスラー合金の輸送特性、について理論的解析から考察を加えている。さらに、ハーフホイスラー化合物においては遷移金属・半金属両サイトの置換は熱電変換特性の向上に対し有効であることを指摘している。

第四章は結論であり、本研究で得られた成果を要約している。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、高温におけるホイスラー合金の熱電変換特性を評価するとともに、元素置換による熱電変換性能の向上を目的としている。世界的に急増する電力需要とそれに伴う地球温暖化の防止に向けた国際的な取組みの中で、現有電力源の効率的利用が必要とされている。現在および将来にわたって発電施設に求められる技術的な課題の解決策のひとつとして熱電変換材料の利用が世界的に注目されており、高性能熱電変換材料の開発が求められている。本論文は、ホイスラー合金に着目しその熱電変換特性に及ぼす元素置換効果について研究した成果をまとめたものである。

主な成果は以下のように要約できる。

各種ホイスラー合金を作製、実験的に特性を評価し、(1)$Fe_{3-x}V_xAl$ 系化合物においては元素置換に伴い熱起電能が p 型から n 型に変化すること、(2)この変化を利用することにより、p・n 両型において高い出力因子を持つ熱電変換材料を作製できること、(3)各材料の熱伝導率は置換元素量・元素種に強く依存し、元素置換により格子熱伝導率は低減すること(4)ハーフホイスラー化合物においては遷移金属・半金属両サイトを置換すると熱電変換特性が向上すること、が示されている。

第一原理分子軌道法を用いた量子化学計算に基づき、(1)ホイスラー化合物における擬ギャップの生成のメカニズム、(2)$Fe_{3-x}V_xAl$ における主要キャリア変化の理由、(3)$Fe_{3-x}V_xAl$ における V 置換量増加に伴う格子定数減少の原因、(4)各ホイスラー合金の輸送特性、について理論的解析から考察を加え、またその変化を再現・予測できることが示されている。さらに、ハーフホイスラー化合物においては遷移金属・半金属両サイトの置換は熱電変換特性の向上に対し有効であることを指摘している。

以上のように、ホイスラー合金の熱電変換特性に関して、重要な知見を与えている。さらに、金属材料の電子構造に関して多くの基礎的知見を提供している。これらの知見は、原子力工学・環境工学及び材料工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。