

Title	Thermoelectric properties study of semiconductors with First Principles Calculation
Author(s)	船島, 洋紀
Citation	
Issue Date	
Text Version	none
URL	http://hdl.handle.net/11094/46737
DOI	
rights	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

氏名	舩 島 洋 紀
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 20437 号
学位授与年月日	平成 18 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物質創成専攻
学位論文名	Thermoelectric properties study of semiconductors with First Principles Calculation (第一原理計算を用いた半導体の熱電特性の理論的研究)
論文審査委員	(主査) 教授 吉田 博 (副査) 教授 三宅 和正 教授 北岡 良雄

論 文 内 容 の 要 旨

18 世紀初頭に熱電現象が発見されて以来、熱電材料は効率的な電気・熱のエネルギー変換技術として注目されて来た。1950 年代に A. Φ. Ioffe が縮重化合物半導体を用いる事で、エネルギー変換効率を上げる事が可能であると示唆して以来、1960 年代～1970 年代に精力的に既存の半導体・合金について熱電特性が調べられて来た。しかし、エネルギー変換効率が既存技術に取って代わるほど良くなかった為に、目覚ましい成果を得る事が出来なかった。そのため、現在はごく限られた用途でしか熱電現象を用いたデバイスは使われていない。

しかし、近年、新しいエネルギー変換技術として再び熱電変換に注目が集まっている。これは、30 年前と異なり現在探索されている物質が過去に探索されたものよりも遥かに複雑な物質が探索されている事、また計算機物理学の技術の向上によって 30 年前に比べて格段に精度よく物質の電子構造ならびに熱電特性の解析・定量的な行える様になった事に立脚している。また、環境問題の観点から、環境調和性の良いエネルギー変換技術としても注目されている。既存の熱電材料の問題は次の通りである。まず、第一に前述の通りエネルギー変換効率が低い事である。第二に既存の熱電材料は Bi、Te、Se、Pb など重金属を扱っている。そのため、近い将来使用が危ぶまれている。したがって新しい代替材料を早急に探索する必要がある。

今回、FLAPW 法を用いた第一原理計算を行って電子構造計算を行なった。その電子構造を基に Mott-Jones の Formulation に基づいた熱電特性の計算を行なった。

まず、第一に実用化されている既存の熱電材料と計算による比較検証を行った。その結果、実験と定性的にも定量的にも熱電特性（ゼーベック係数、電気伝導度、出力因子）が良い一致を得られた。

そこで、本研究でのフレームワークでの有効性が実証されたので、既存の熱電材料に替わる新しい熱電材料としてデラフオサイト化合物ならびにハーフホイスラー化合物について熱電特性の計算を行ない、熱電材料の物質探索の指針を示した。

論文審査の結果の要旨

18世紀初頭に熱電現象が発見されて以来、熱電材料は効率的な電気・熱のエネルギー変換技術として注目されて来た。しかし、エネルギー変換効率が既存技術に取って代わるほど良くなかった為に、目覚ましい成果を得る事が出来なかった。そのため、現在では、ごく限られた用途でしか熱電現象を用いたデバイスは使われていない。近年、環境調和性と高効率エネルギー変換技術として再び熱電変換に注目が集まっている。既存の熱電材料の問題は、まず、第一にエネルギー変換効率が低い事である。第二には、既存の熱電材料はBi、Te、Se、Pbなど重金属であり、環境調和性のある新しい代替材料を早急に開発する必要がある。

これらを解決するために、船島洋紀君は、FLAPW法による第一原理計算を行って、その電子構造を基に熱電特性（ゼーベック係数、電気伝導度、出力因子）の計算手法を開発した。実用化されている既存物質の熱電特性と計算結果の定量的比較を行い、定量的にも良い一致を得られることを示した。

船島洋紀君は理論の有効性を既存物質で実証したのち、既存の熱電材料に替わる新しい熱電材料としてデラフオサイト化合物 (AgAlO_2 , CuAlO_2) ならびにハーフ・ホイスラー化合物 (MNiSn , MCoSb , $\text{M}=\text{Ti, Zr, Hf}$) について、第一原理電子状態計算と熱電特性の計算を行ない、熱電材料の物質探索の指針 (マテリアルデザイン) を示した。その結果、デラフオサイト化合物については AgAlO_2 が、ハーフ・ホイスラー化合物に付いては ZnNiSn が高い熱電特性を示すことを予測し、新しい高効率熱電材料として本研究のガイドラインに従う事で高い熱電効率が期待できる事を定量的に示した。

このように、船島洋紀君は実験を用いなくて原子番号だけを入力パラメータとする第一原理計算に基づいて、熱電材料の物質設計や新物質探索の新しい手法を確立し、その成果は実際の高効率熱電材料の開発に応用できるレベルにあることを示した。

以上の理由により、博士 (理学) の学位論文として価値のあるものと認める。