

Title	Thermoelectric properties of half-Heusler related compounds
Author(s)	関本, 健之
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48505
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。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名	関 本 健 之
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 21223 号
学位授与年月日	平成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科原子力工学専攻
学位論文名	Thermoelectric properties of half-Heusler related compounds (ハーフホイスラー関連化合物の熱電特性)
論文審査委員	(主査) 教授 山中 伸介 (副査) 教授 山口 彰 教授 山本 孝夫 助教授 宇埜 正美 助教授 下田 吉之

論文内容の要旨

熱電変換技術は、各所に分散した廃熱利用の観点から近年注目を集めている。熱電変換素子を構成する材料としては、より毒性が少なく、安価であり、かつ高性能な材料が求められている。本論文は、高性能な新規熱電変換材料の探索とその性能の改善を目的としており、高い熱起電力を持つことで知られるハーフホイスラー化合物に関する研究成果をまとめたものである。

第一章では、熱電変換に関連する基礎理論を述べ、既存、新規材料、特にハーフホイスラー化合物の現状を簡潔に整理した。材料の熱電及び各種特性の測定、計算方法について記述した。

第二章で、n 型 (Ti, Zr, Hf)CoSb 系及び、p 型 (Ti, Zr)CoSn_xSb_{1-x} 系ハーフホイスラー化合物に関する研究成果をまとめた。まず、TiCoSb について熱処理時間の違いによる熱電特性の変化を議論し、次に TiCoSb について熱電特性の組成依存性を Jonker プロットにより解析した。結果は、組成のずれによって生じた不純物準位がキャリア濃度を増加、移動度を減少、有効状態密度を増加させることを示唆した。次に Ti サイトを Zr 及び Hf で合金化した (Ti, Zr, Hf)CoSb 系の熱電特性を評価した。格子熱伝導に寄与するフォノンの合金散乱が最大となる TiCoSb-ZrCoSb-HfCoSb 擬三元系相図の中央近傍の組成で熱伝導度の大幅な減少に成功した。最後に p 型 (Ti, Zr)CoSn_xSb_{1-x} 系材料について熱電特性及び各種物性を評価した。ZrCoSb の Sb サイトを Sn で 10%置換した組成 ZrCoSn_{0.1}Sb_{0.9} で、既存材料 SiGe に匹敵する性能指数を得ることに成功した。

第三章では、ランタノイド Ln を含む p 型 LnPdX (Ln=La, Gd, Er ; X=Sb, Bi) 系に関する研究成果をまとめた。ハーフホイスラー化合物 ErPdSb 及び LnPdBi は半導体的な特性を持ち、その物性がエネルギーギャップの違いにより大きく左右されることを示した。一方、六方晶構造 LaPdSb、GdPdSb は半金属・金属的な特性を示し、特に LaPdSb は室温で既存材料の Bi₂Te₃ に匹敵する非常に高い出力因子を示した。

第四章で、各章で得られた結果を総括し、高い熱電特性を示した ZrCoSn_{0.1}Sb_{0.9} や LaPdSb 等の新規材料に関して更なる性能向上のための指針を示した。

論文審査の結果の要旨

本論文では、高性能な新規熱電変換材料の探索とその性能の改善を目的としており、高い熱起電力を持つことで知られるハーフホイスラー及びその関連化合物に関する研究成果をまとめている。

第一章では、熱電変換に関する基礎理論を述べ、既存、新規材料、特にハーフホイスラー化合物の現状を整理している。最後に、材料の熱電及び各種特性の測定、計算方法について記述している。

第二章では、n 型 (Ti, Zr, Hf)CoSb 系及び p 型 (Ti, Zr)CoSn_xSb_{1-x} 系ハーフホイスラー化合物に関する研究成果をまとめている。まず、TiCoSb について熱処理時間の違いによる熱電特性の変化を議論し、次に TiCoSb について熱電特性の組成依存性を Jonker プロットにより解析している。結果は、組成のずれによって生じた不純物準位がキャリア濃度を増加、移動度を減少、有効状態密度を増加させることを示唆する。次に Ti サイトを Zr 及び Hf で合金化した (Ti, Zr, Hf)CoSb 系の熱電特性を評価する。格子熱伝導に寄与するフォノンの合金散乱が最大となる TiCoSb-ZrCoSb-HfCoSb 擬三元系相図の中央近傍の組成で熱伝導度の大幅な減少に成功している。最後に p 型 (Ti, Zr)CoSn_xSb_{1-x} 系材料について熱電特性及び各種物性を評価する。ZrCoSb の Sb サイトを Sn で 10%置換した組成 ZrCoSn_{0.1}Sb_{0.9} で、既存材料 SiGe に匹敵する性能指数を得ることに成功している。

第三章では、ランタノイド Ln を含む p 型 LnPdX (Ln=La, Gd, Er ; X=Sb, Bi) 系に関する研究成果をまとめている。ハーフホイスラー化合物 ErPdSb 及び LnPdBi は半導体的な特性を持ち、その物性がエネルギーギャップの違いにより大きく左右されることを示す。一方、六方晶構造 LaPdSb, GdPdSb は半金属・金属的な特性を示し、特に LaPdSb は室温で既存材料の Bi₂Te₃ に匹敵する高い出力因子を示す。

第四章では、各章で得られた結果を総括し、高い熱電特性を示した ZrCoSn_{0.1}Sb_{0.9} や LaPdSb 等の新規材料に関して性能向上のための指針を示している。

以上のように、本論文は申請者が見出した新規ハーフホイスラー及びその関連化合物に関する研究成果を含む、非常に有用な論文である。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。