The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	擬ギャップ・狭ギャップを有するAl系材料の電子構造および熱電特性
Author(s)	熊谷, 将也
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/61749
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（熊谷　将也）	
論文題名	擬ギャップ・狭ギャップを有するAl系材料の電子構造および熱電特性

論文内容の要旨

本論文は，擬ギャップ・狭ギャップを有するAl系材料に着目し，第一原理計算および実験の両面から総合的に電子構造および熱電特性の評価を行なったものである．本論文は，以下の五章から構成されている．

第一章は序論であり，熱電変換材料の開発が求められている理由をはじめ，熱電変換材料を評価する上で必要な理論や設計指針を説明した．また，既存の熱電変換材料の現状や課題を明確に述べ，本研究の目的を示した．

第二章では，擬ギャップを有するAl系材料Al_3Vの電子構造および熱電特性を評価した．第一原理計算により，Al_3Vにおける擬ギャップがAlのsp軌道とVのd軌道の混成軌道によって形成されていることを示した．特にVのd軌道が状態密度に急峻な傾きを形成することによって，高い電気的特性が得られる可能性を示した．また実験により，VサイトをTiで置換したAl_3Vが既存のAl系熱電変換材料に匹敵する高い電気的特性を示すことを確認した．さらに，Vサイトに対するTi置換が格子熱伝導率に与える影響を散乱機構の観点から評価した．

第三章では，同じく擬ギャップを有するAl系材料Al_5Co_2の電子構造および熱電特性を評価した．Al_5Co_2の電気的特性は，Coのd軌道がつくり出す状態密度の急峻な傾きによって高い値を示した．また，Al_3Vとの比較を行い，結晶中に存在する結合性の違いを明らかにした．さらに，Al_5Co_2の格子熱伝導率が既存のAl系熱電変換材料よりも低いことを示すとともに，その要因を結晶構造の複雑さによって説明した．

第四章では，狭ギャップを有するAl系材料Al_6Ge_5の作製手法の確立および電子構造や熱電特性の評価を行なった．Al_6Ge_5は準安定材料であるため，これまでに単相試料の作製や物性の測定に成功した例は存在しなかった．ところが，本研究において単ロール液体急冷装置を用いることにより，リボン状のAl_6Ge_5単相試料が作製可能であることを示した.また，そのリボン試料を用いて室温における熱電特性の測定に成功した．Al_6Ge_5の格子熱伝導率は，既存の高性能熱電変換材料に匹敵する極めて低い値を示した．さらに，バンドギャップの存在を第一原理計算および光学的測定の両面から明らかにした．

第五章は，本論文の総括および今後の展望について述べた．総括では，本研究で得られた3つのAl系材料と既存のAl系熱電変換材料を比較し，新規熱電変換材料としての可能性についてまとめた．今後の展望では，格子熱伝導率を低減するための材料作製手法や，新規熱電変換材料を探索するための手法を提案した．

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　熊谷　将也　）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	准教授	黒﨑　健
	副 査	教授	山本　孝夫
	副 査	教授	北田　孝典
	副 査	教授	山中　伸介（理事・副学長）
	副 査	准教授	牟田　浩明

論文審査の結果の要旨

本論文では，擬ギャップ・狭ギャップを有する Al 系材料に着目し，第一原理計算および実験の両面から総合的に電子構造および熱電特性の評価が行われ，以下のようにまとめられている．

第一章は序論であり，熱電変換材料の開発が求められている理由をはじめ，熱電変換材料を評価する上で必要な理論や設計指針が説明されている．また，既存の熱電変換材料の現状や課題を明確に述べ，研究の目的を示している．

第二章では，擬ギャップを有する Al 系材料 Al_3V の電子構造および熱電特性が評価されている．第一原理計算により，Al_3V における擬ギャップが Al の sp 軌道と V の d 軌道の混成軌道によって形成されていることを示している．特に V の d 軌道が状態密度に急峻な傾きを形成することによって，高い電気的特性が得られる可能性を示している．また，V サイトを Ti で置換した Al_3V が既存の Al 系熱電変換材料に匹敵する高い電気的特性を示すことの実験による確認もされている．さらに，V サイトに対する Ti 置換が格子熱伝導率に与える影響を散乱機構の観点から評価している．

第三章では，同じく擬ギャップを有する Al 系材料 Al_5Co_2 の電子構造および熱電特性が評価されている．Al_5Co_2 の電気的特性は，Co の d 軌道がつくり出す状態密度の急峻な傾きによって高い値が得られることを示している．また，Al_3V との比較を行い，結晶中に存在する結合性の違いを明らかにしている．さらに，Al_5Co_2 の格子熱伝導率が既存の Al 系熱電変換材料よりも低いことを示すとともに，その要因を結晶構造の複雑さによって説明している．

第四章では，狭ギャップを有する Al 系材料 Al_6Ge_5 の作製手法の確立および電子構造や熱電特性の評価が行なわれている．Al_6Ge_5 は準安定材料であるため，先行研究においても単相試料の作製や物性の測定に成功した例は存在しなかったが，本研究において単ロール液体急冷装置を用いることでリボン状の Al_6Ge_5 単相試料が作製可能であることを示している．また，そのリボン試料を用いて室温における熱電特性の測定にも成功している．Al_6Ge_5 の格子熱伝導率は，既存の高性能熱電変換材料に匹敵する極めて低い値を示している．さらに，バンドギャップの存在を第一原理計算および光学的測定の両面から明らかにしている．

第五章は，本論文の総括および今後の展望について述べている．総括では，本研究で得られた 3 つの Al 系材料と既存の Al 系熱電変換材料を比較し，新規熱電変換材料としての可能性についてまとめている．また，今後の展望として，格子熱伝導率を低減するための材料作製手法や新規熱電変換材料を探索するための手法の提案がされている．

以上のように，本論文は新規熱電変換材料として 3 つの Al 系材料を提案し，その可能性を実験および第一原理計算によって総合的に評価するだけに留まらず，得られた結果を踏まえてさらなる性能向上を図るための手法や新規材料探索の手法を提案している．これらの成果は，熱電材料分野のみならず材料工学全体の発展に大きく貢献するものである．よって本論文は博士論文として価値あるものと認める．