The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	ZnOナノワイヤ埋め込み構造を用いて電子輸送制御した透明熱電材料に関する研究
Author(s)	石部, 貴史
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/70774
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

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　石　部　貴　史　）	
論文題名	Zn0ナノワイヤ埋め込み構造を用いて電子輸送制御した透明熱電材料に関する研究

論文内容の要旨

化石燃料に頼らない新エネルギー回収技術として熱電変換が注目されている。熱電性能（無次元性能指数: $ZT = S^2\sigma T/\kappa$; S: ゼーベック係数, σ: 電気伝導率, κ: 熱伝導率, T: 絶対温度）向上のため、κ低減と$S^2\sigma$増大を同時実現する方法論が求められている。

本論文では、透明材料の廃熱を電気に変換可能な透明熱電材料の開発を狙って、可視光領域で透明であり、かつユビキタス元素で構成されるZnOに注目し、ZnOナノワイヤ (NW) をZnO薄膜中に埋め込んだZnOナノワイヤ埋め込み構造 (ENS) を提案した。本構造では、NW界面でのフォノン散乱促進により、κの低減が予想される。さらに、NWと薄膜のエピタキシャル界面のドーパント濃度を制御し、エネルギー障壁を有するエピタキシャル結晶界面（変調ドープエピタキシャル界面（MDE界面））を形成する。これにより、選択的に高エネルギー電子が高界面透過率を有し、その結果、$S^2\sigma$が増大すると期待できる。以下に、①構造・光学特性、②電子輸送、③伝熱特性について成果をまとめる。

① ENS中のNWは、コア/シェルエピタキシャル界面を有しており、その界面では、局所的な低ドーパント濃度が実現されていることから、MDE界面の形成に成功したことが分かった。また、可視光領域で40%以上の透過率を実現した。

② ENSは、バルク程度に高いσを維持しつつ、薄膜よりも高いSを示し、その結果、$S^2\sigma$の増大を実現した。高キャリア密度（$n = 2\times10^{20}$ cm^{-3}）試料においては、$S^2\sigma$はZnO系薄膜の最大値を2倍程度更新した。低温下での電子輸送を観測することで、この$S^2\sigma$増大は、粒界散乱が存在しないことによる高い移動度、及びk_BT程度（k_B: ボルツマン定数）のエネルギー障壁による高いSに起因することを明らかにした。

③ ENSのκは、アンドープ試料（$n = 5\times10^{17}$ cm^{-3}）では17.9 W m^{-1}K^{-1}となった。この値を用いて、高キャリア密度（$n = 2\times10^{20}$ cm^{-3}）試料では、1.1 ~ 4.5 W m^{-1}K^{-1}と予測した。

これらの結果より、ZTは室温下で0.04 ~ 0.19に達すると予想した。これは、MDE界面を有するENSにおいて、積極的な$S^2\sigma$増大とκ低減の同時実現の可能性を示したと言える。将来的展望として、更なるκ低減に向けて、NW面密度増大によるフォノン散乱界面の増大を提案し、独自のナノドットを用いることで、NWの面密度制御幅を広域化することに成功した。

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　石　部　貴　史　）		
論文審査担当者	（職）	氏　名
	主 査　教 授	中 村 芳 明
	副 査　教 授	酒 井 朗
	副 査　教 授	阿 部 真 之
	副 査　教 授	森 伸 也　（工学研究科）

論文審査の結果の要旨

廃熱エネルギー回収の方法として期待される熱電変換の性能向上のためには、熱伝導率が低く、ゼーベック係数と電気伝導率が高い材料の開発が必須である。しかし、それらの物性には相関があるため性能向上は難しく、現在、ナノ構造を用いた熱伝導率低減と熱電変換出力因子増大（ゼーベック係数の二乗×電気伝導率）を同時実現することが求められている。本研究においては、透明材料の廃熱をターゲットとし、長年難しかったこの熱電物性制御を、ナノ構造を用いて実現する方法論の確立を目的としている。本研究では透明熱電材料として透明なユビキタス元素材料ZnOに注目し、ZnOナノワイヤ をZnO薄膜中に埋め込んだ構造を用いた熱電物性制御法が提案されている。本構造では、ナノワイヤ界面においてドーパント濃度が制御され、エネルギー障壁を有するエピタキシャル結晶界面が膜中に導入されている。その結果、高エネルギー電子が高確率で界面透過可能となり、薄膜の移動度はそれほど低下せずゼーベック係数の増大が期待できる。また、ナノワイヤ界面でのフォノン散乱促進により、熱伝導率の低減が予想されるため、本構造では、熱伝導率低減と出力因子増大の同時実現が期待できる。本研究では、物理気相輸送法とパルスレーザー堆積法を融合することで直径50nm、面密度10^9~10^{10} cm^{-2}のZnOナノワイヤをZnOで埋め込んだ独自構造薄膜を形成する技術が開発されている。ナノワイヤ界面のエピタキシャル成長及びドーパント濃度変調は、断面透過型電子顕微鏡法により確認されている。また、本構造の熱電特性を調べた結果、出力因子を増大することに成功し、その結果、ZnO系薄膜の最大値を2倍程度更新している。また、本構造薄膜の熱伝導率を測定した結果、薄膜と比べて熱伝導率を低減することに成功している。以上のように、本論文は、ZnOナノワイヤ埋め込み構造を形成し、熱伝導率と出力因子増大を同時実現する機構に関する学理を究め、性能向上の方法論を確立したといえるものであり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。