

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 馮 磊

本論文は「Simulation of decoupled thermal and electrical transport in silicon nanostructures (熱と電子の輸送を独立制御するためのシリコンナノ構造の数値計算)」と題し、数値解析により内部に異種ナノ構造を有するシリコン(Si)の熱電物性を熱および電子輸送の弾道性と拡散性を考慮して解析し、ナノ構造による熱伝導と電気伝導の独立制御性を示したものである。

熱電変換は熱エネルギーを電気エネルギーに直接変換できるエネルギーハーベスティング技術である。実用に向けては変換効率と材料・プロセスのコストがボトルネックになっており、これを解決し得る材料として、Si を基盤材料とした熱電変換材料の研究が盛んに行われている。そこで鍵となるのが、熱伝導を担うフォノン輸送と電子輸送を独立に制御することであり、それに向けて、ナノ粒子や超格子構造などの様々なナノ構造が近年作製・評価されている。一方で、ナノ構造の組成や幾何学とフォノン・電子輸送の関係が明らかでないことが大きな課題であり、解析的な研究への期待が高い。以上を踏まえて本論文では、格子動力学法、グリーン関数法、分子動力学法などの複数の手法を組み合わせ、2つの Si ナノ構造系を対象に、フォノンや電子の弾道的な透過や反射に加えて、内在的な拡散も考慮した数値解析を行い、ナノ構造の幾何学を通じてフォノン輸送と電子輸送の独立制御性を示した。論文は全 5 章よりなっている。

第 1 章は、「Introduction」であり、ナノスケールでの熱輸送の非フーリエ性（弾道性）やそれを利用した制御性、Si 熱電変換材料へのニーズ、および変換効率向上に向けた熱輸送と電子輸送の独立制御の重要性を議論し、論文全体の流れを述べている。

第 2 章は、「Methodology」であり、本論文で用いた計算手法について説明している。フォノン輸送の解析に用いた、第一原理計算、分子動力学計算、波束法、原子グリーン関数法および、電子輸送の解析に用いた、非平衡グリーン関数法、

タイトバインディング法，さらに，それらや既存のデータを組み合わせて弾道性と拡散性の両方を考慮して輸送係数および性能指数を見積もる手法を説明している．

第 3 章は，「Morphology exploration of nano-silica in Si matrix for ZT」であり，非晶質シリカナノ粒子が Si 母材に埋め込まれた系に関して解析を行っている．過去の実験で行われた構造作製および熱輸送計測を参照しながら，熱輸送と電子輸送の両方を計算する必要性を説いている．様々な幾何学や面密度（流束と直行する面内でのナノ構造部分の占める比面積）などの構造パラメータが熱伝導率，電気伝導率，ゼーベック係数に与える影響を詳細に計算した結果，ナノ粒子の面密度の影響が特に強い一方で，それへの熱輸送と電子輸送の依存性の傾向が異なることを明らかにしている．また，それにもとづいて，適切な構造パラメータを選択することで，室温の性能指数が Si 単結晶の値のおおよそ 2 倍になると見積もっている．

第 4 章は，「Phonon-interference resonance effects and ZT enhancement of Ge nanoparticles embedded in Si matrix」であり，Si のマトリックス中にゲルマニウムナノ粒子(GeNP)が埋め込まれた系に関して解析を行っている．フォノン輸送の計算の結果，1THz 付近の長波長の音響フォノンの伝播が，GeNP の変形・振動との共鳴により，大きく抑制されることを明らかにしている．また，この現象を用いることにより熱輸送を低減できることを示した．さらに，GeNP のサイズや形状によって共鳴周波数を選択的に変化させられ，GeNP を複数配置することによって生じる粒子の集団的なモードを利用して，共鳴効果を増強させられることを見出している．加えて，共鳴効果によってフォノン透過を抑制するには，ナノ構造の代表長さよりもフォノンのコヒーレント長が桁違いに大きい必要があることを明らかにしている．最後に，3 章と同様の電子輸送の計算も行い，室温の性能指数が Si 単結晶の値のおおよそ 5 倍になると見積もった．

第 5 章は，「Conclusion」であり，上記の研究結果をまとめたものである．

以上を要するに，本論文では，シリコン (Si) を基盤材料とした 2 種類のナノ構造について，ナノ構造のフォノンや電子の輸送に与える影響の微視的な解析を行った．1 つ目のナノ構造として，Si マトリックス中に非晶質シリカナノ粒子を埋め込んだ系を取り扱い，フォノン伝導，電子伝導，熱起電力の全ての物性を評価した．2 つ目のナノ構造としては，Si のマトリックス中にゲルマニウムナノ粒子(GeNP)が埋め込まれた系を解析した．ここでは，フォノン波束動力学

法や有限要素法を用いて GeNP によるフォノン波の透過と反射を評価し、共鳴効果によりテラヘルツ周波数のフォノンの透過が強く阻害されることを明らかにしている。さらに、複数の GeNP を配列することで、複合モードの共鳴により抑制効果を増大できることを示している。また、同共鳴効果のフォノン波の特性長への依存性など、実用上で重要になる効果についても評価を行っている。以上の2つのナノ構造のいずれにおいても、フォノンや電子の弾道的な透過や反射に加えて、内在的な拡散も取り込んでいるところが特徴的である。それによって、ナノ粒子の形状や大きさを変えながら計算を行うことで構造への感度がフォノンと電子で異なることを示し、構造を緻密に制御することができればフォノン輸送と電子輸送の独立制御が可能であることを明らかにした。以上のように、従来にはなかったレベルの複合的な解析によって、ナノ構造の熱電物性の制御性や、それにまつわるナノスケール熱輸送に関する理解を深め、熱電変換材料の開発に有用な知見を得ることに成功した。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。