

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	First-principles materials design of inorganic semiconductors with defects and phonon scattering
著者(和文)	HeXinyi
Author(English)	Xinyi He
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12195号, 授与年月日:2022年9月22日, 学位の種別:課程博士, 審査員:神谷 利夫,大場 史康,松石 聡,山本 隆文,片瀬 貴義
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12195号, Conferred date:2022/9/22, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	He Xinyi	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	神谷 利夫	教授	山本 隆文	准教授
	審査員	片瀬 貴義	准教授		
		大場 史康	教授		
松石 聡		准教授			

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、“**First-principles materials design of inorganic semiconductors with defects and phonon scattering**”と題して全7章から構成され、英文で執筆されている。

**Chapter 1 “General introduction”**では、まず、第一原理量子計算を実際の材料に応用する際の限界について議論している。第一原理計算は基本的には完全周期性をもつ理想結晶について信頼性の高い構造・物性予測を可能にしているが、実際の材料の特性は、理想結晶からはずれた様々な欠陥や原子振動に支配される。そのため、静的な欠陥と動的な欠陥-フォノンおよびフォノン散乱を考慮することが材料設計に重要であるとしている。最近の第一原理欠陥計算と非調和フォノン計算の進展を概観し、これらの手法を利用して新しい半導体・熱電材料を開拓することが本研究の目的であると述べている。

**Chapter 2 “Computational methods”**では、本論文で用いた第一原理電子構造・欠陥計算、化学結合解析と非調和フォノン計算手法の原理と計算条件についてまとめている。

**Chapter 3 “Design of high-purity layered nitride semiconductor,  $AETM\text{N}_2$  ( $AE = \text{Ca, Sr, Ba}$  and  $TM = \text{Ti, Zr, Hf}$ )”**では、2次元電子構造を有する高移動度半導体として期待される層状  $AETM\text{N}_2$  について、電子構造と欠陥生成の解析を行っている。既に報告されている論文では、合成された  $\text{SrTiN}_2$  は不純物を多く含み、縮退伝導を示すため、 $\text{SrTiN}_2$  本来の電子物性が不明であるという問題があった。これに対して He 氏は、 $\text{SrTiN}_2$  の点欠陥、複合欠陥および酸素・水素不純物の欠陥生成エネルギーを計算し、窒素の化学ポテンシャルが低い極限でも高い極限でも大気中の酸素不純物を取り込みやすいが、中間の合成条件において酸素不純物の取り込みを低減させられることを示している。さらに、Sr 位置を Ca で置換した  $\text{CaTiN}_2$  と Ti 位置を Hf で置換した  $\text{BaHfN}_2$  では、Ca-N と Hf-N が強い化学結合をもつため、酸素不純物の生成を大きく抑制できることを明らかにし、共同研究者の実験によって、高純度な  $\text{BaHfN}_2$  半導体バルク試料が合成できることを実証している。

**Chapter 4** と **Chapter 5** については、未公表のため省略する。

**Chapter 6 “Degenerated hole doping and thermal conductivity reduction of SnSe by isovalent Te ion substitution”**では、SnSe に対して  $\text{Se}^{2-}$  と同価数でイオン半径の大きい  $\text{Te}^{2-}$  を固溶させることで、高い電気伝導度と低い熱伝導率を両立できることを発見し、熱電変換効率を 30 倍に向上させることに成功している。一般的に等原子価イオンの置換ではキャリア濃度は変化しないと考えられるが、弱い Sn-Te 結合が形成されることで Sn 欠損形成エネルギーが低くなり、Sn 欠損濃度が増えることで正孔濃度が増加し、同時にフォノン散乱が増強されるという機構で説明している。

**Chapter 7 “General conclusion”**では、本研究における結果を総括している。

以上を要するに、本論文では、第一原理欠陥計算と非調和フォノン計算を用いて、 $AETM\text{N}_2$ 、 $AEO$ 、 $\text{SrTiO}_3$ 、 $\text{SnSe}$  について静的・動的な欠陥が半導体・熱伝導物性に与える影響とそれらの機構を系統的に理解し、新半導体・熱電材料の設計に新しい指針を与えている。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ (T2R2) にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。