

Sb, Bi 不純物添加による マグネシウムシリサイド格子熱伝導率の低減効果

Effects of Bi and Sb doping on lattice thermal conductivity in melt grown Mg_2Si

茨城大院¹, 東大院² ○大竹 秀明¹, 大坪 翼¹, 志賀 拓磨², 塩見 淳一郎², 鵜殿 治彦^{1*}

Ibaraki Univ.¹, The Univ. of Tokyo² ○H.Otake¹, T.Otsubo¹, T.Shiga², J.Shiomi², H.Udono^{1*}

*E-mail: udono@mx.ibaraki.ac.jp

【はじめに】我々は、原料が豊富で無毒な Mg_2Si 熱電材料に注目して融液成長 Mg_2Si 結晶の熱電利用技術の開発を進めている[1]。 Mg_2Si の融液成長結晶では粒径が数ミリ以上と大きく、粒界の酸化も無いために、高い電気伝導率とパワーファクターが実現できる。しかし、一般に熱伝導率が焼結多結晶よりも高いために、ZT は大きく改善できていない[2]。今回、Bi や Sb を不純物として少量固溶させることで格子熱伝導率が大幅に低減されることに注目し[3]、Bi, Sb 添加した Mg_2Si 結晶の不純物含有量、キャリア濃度、格子定数及び熱伝導率の関係について実験値と理論値を用いて調査したので報告する。

【実験方法】測定試料は垂直ブリッジマン法によって成長した Mg_2Si 結晶を用いた[2]。Bi, Sb 不純物は原料中にそれぞれ 0.5-3.0at%、0.1-3.0at%の割合で添加した。成長結晶のキャリア濃度は Hall 効果測定、不純物含有量は XRF によって評価した。格子定数は粉末 X 線回折測定の高次回折ピークから、外挿法で算出した。この際、内部標準として Si 粉末を混入し、温度補正も行った。熱拡散率はレーザフラッシュ法で測定した。また、第一原理計算により Bi, Sb が Si サイトを置換したとして格子熱伝導率を計算した。

【実験結果と考察】図 1 に格子定数と不純物含有量の関係を示す。Sb, Bi に関わらず格子定数は不純物含有量に比例して大きくなり、不純物による差は得られなかった。図 2 に室温での不純物含有量に対する熱拡散率の関係を示す。Bi, Sb 共に含有量の増加に伴い熱拡散率は低減している。Bi と Sb で熱拡散率の変化に異なる勾配があるように見え、これは原子量の違いを反映していると考えられる。これら実験結果との比較のために格子熱伝導率の低減率を理論計算から求めた結果、僅かな Sb, Bi 含有量が格子熱伝導に影響する結果を良く再現した。

【謝辞】本研究の一部は科学研究費補助金(25289081)によって行われた。

【参考文献】

- [1]H.Udono et al., ICT, C.a.5, 2008, Oregon, USA.
- [2]高橋,鵜殿他, 2011 年日本熱電学会予稿集 26p-PS-13.
- [3]大竹,鵜殿他, 2014 年春季応用物理学会 19a-PG3-6.

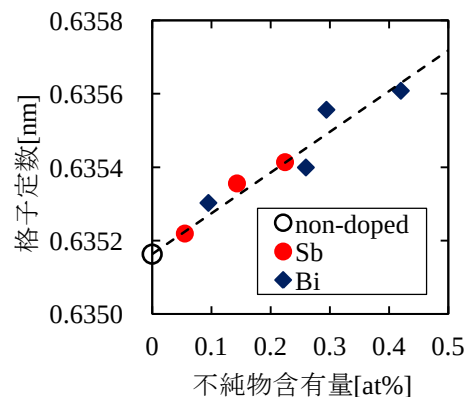


図 1 格子定数と不純物含有量

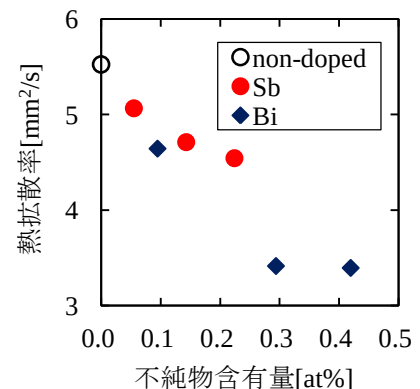


図 2 熱拡散率と不純物含有量