

粒径制御したアルミノボライド $Y_{0.56}Al_{0.6}B_{14}$ の熱電特性

Thermoelectric properties of Aluminoborides, $Y_{0.56}Al_{0.6}B_{14}$, with reduced grain size

物材機構¹, 東北大院工², 筑波大院数物³ ○丸山 恵史^{1,2}, 西村 聡之¹, 宮崎 譲², 林 慶²,
梶谷 剛², 森 孝雄^{1,3}

NIMS¹, Tohoku Univ.², Univ. Tsukuba³ ○Satofumi Maruyama^{1,2}, Toshiyuki Nishimura²,

Yuzuru Miyazaki², Kei Hayashi², Tsuyoshi Kajitani² and Takao Mori^{1,3}

E-mail: MORI.Takao@nims.go.jp

【はじめに】 多ホウ化物における代表的な高温熱電材料として p 型のボロンカーバイドが挙げられる。対の n 型材料として, $RB_{17}CN$ や $RB_{22}C_2N$ ($R =$ 希土類元素)が報告されているが[1], 熱電特性は十分ではなく, 更なる材料探索が望まれる。最近, 我々は YB_4 , B と過剰の Al を混合して真空中で焼成する Al flux 法で $Y_{0.56}Al_{0.6}B_{14}$ 多結晶の合成に成功し, $Y_{0.56}Al_{0.6}B_{14}$ が n 型の熱電材料であることを発見した[2]。しかし, 電気抵抗率と熱伝導率が高い問題点があった。Al flux 法では焼成中に結晶粒が成長することが予想されるため, 本研究では合成法を変えることで粒径を減少し, 熱伝導率の低減を試みた。

【実験方法】 Y_2O_3 と B を使って, ホウ素熱還元法により前駆体の $Y_{0.56}B_{14}$ を合成し, さらに Al を加えて熱処理することで試料を合成した (以下, 前駆体経由法と表記する)。放電プラズマ焼結 (SPS) を用いて成型し, 電気抵抗率, Seebeck 係数および熱伝導率を測定した。粉末 X 線回折実験を用いて相同定を行い, 走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて SPS 後の試料の組織観察を行った。

【実験結果】 前駆体経由法で合成した試料は, 単相の $Y_{0.56}Al_{0.6}B_{14}$ であることを確認した。SPS 後の試料の SEM 画像を Fig.1 に示す。Al flux 法の試料の粒径は $20 \sim 30 \mu m$ 程度と大きいのにに対し, 前駆体経由法では $5 \mu m$ 程度と小さくすることができた。SEM 画像上では Al flux 法の試料の方が密に見えるが, どちらの試料も焼結密度は 83 % 程度であった。このときの Al flux 法と前駆体経由法の SPS 焼結温度は, それぞれ 1823 K と 1673 K であった。焼結温度を 150 K 下げたにも関わらず同程度の焼結密度を得ることができた理由は, 前駆体経由法で合成した粉末の粒径が減少し, 比表面積が増加したためである。合成した試料の熱伝導率を Fig.2 に示す。前駆体経由法の試料では, Al flux 法と比較して粒界散乱が増加し, 熱伝導率が低下した。電気抵抗率も増加したものの, 熱伝導率の低減効果により ZT が向上した。講演では Al flux 法にボールミル粉砕を組み合わせた合成法についても報告する。

[1] T. Mori et al., *J. Solid State Chem.*, **179** (2006) 2908.

[2] S. Maruyama et al., *Appl. Phys. Lett.*, **101** (2012) 152101.

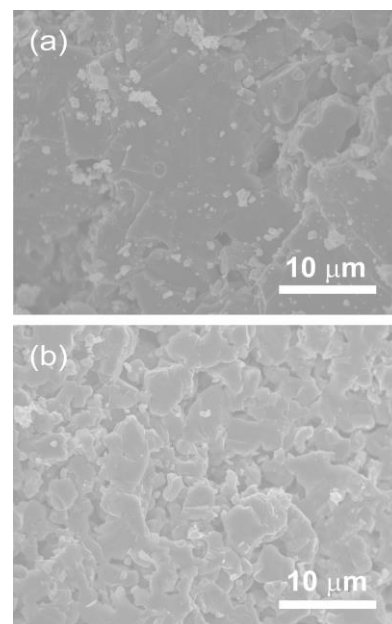


Fig.1 SEM images of SPS sintered samples of (a) Al flux method and (b) $Y_{0.56}Al_{0.6}B_{14}$ via $Y_{0.56}B_{14}$ method.

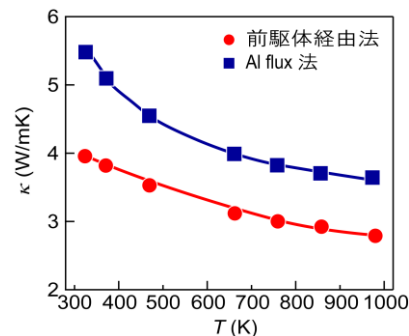


Fig.2 Temperature dependence of the thermal conductivity.