

ホウ素添加による Mg_2Si の熱電特性向上と結晶構造

Thermoelectric properties and crystal structure of B-doped Mg_2Si

○窪内 将隆, 林 慶[†], 宮崎 讓 (東北大院工)

○Masataka Kubouchi, Kei Hayashi[†], Yuzuru Miyazaki (Tohoku Univ.)

[†]E-mail: hayashik@crystal.apph.tohoku.ac.jp

【はじめに】 Mg_2Si は軽量かつ安価な n 型の熱電材料として注目されている。 Mg_2Si に Sb 及び Ni を添加すると $ZT = 0.98$ と非常に高い値を示す。 ¹⁾ 過去にホウ素 (B) を添加することで n 型の熱電特性の向上が報告されているが、 ²⁾ 占有サイトやキャリア密度はわかっていない。本研究では B の添加量を変えた試料を作製し、熱電特性や占有サイトを調査した。

【実験方法】粉末の Mg_2Si (2N), B (3N) を $Mg_2Si + B_x$ ($x = 0, 0.375, 0.75, 1.5, 3.0$) の比率で秤量し、30MPa の圧力下で 10 分間、850°C で放電プラズマ焼結した。試料同様に粉末 X 線回折 (D8 ADVANCE, Bruker AXS) を用い、RIETAN - FP³⁾ で結晶構造を解析した。また熱電特性評価装置 (RZ2001i, OZAWA Science) により電気伝導率と Seebeck 係数を、レーザーフラッシュ法熱伝導率測定装置 (TC7000H, ULVAC-RIKO) で熱伝導率を測定した。キャリア密度測定には PPMS (Quantum Design) を用いた。

【結果と考察】 Mg_2Si に B を添加した試料と undoped 試料の、電気伝導率と Seebeck 係数を Fig.1 に示す。作製した試料は全て負の Seebeck 係数を示し、n 型であることがわかった。また B 添加量 x の増加とともに電気伝導率は向上し、 $x = 0.75$ で最大となった。しかし $x = 0.75$ 以上では、 x の増加に伴い減少した。これは B の固溶限が $x = 0.75$ 付近にあるためと考えられる。粉末 X 線回折の結果からも、 $x \leq 0.75$ の範囲で格子定数の減少が見られ、B の固溶限が $x = 0.75$ であることが示された。Table 1 に undoped 試料と $x = 0.75$ 試料のキャリア密度 n を示す。 $x = 0.75$ 試料のキャリア密度は undoped 試料に比べて約 10 倍であり、B が Mg_2Si の Mg サイトを置換または格子間サイトを占有していることが示唆された。キャリア密度向上の結果、出力因子 PF は $x = 0.75$ 試料で最大となり、 $PF = 3.2 \times 10^{-3} \text{ W/K}^2\text{m}$ を示した。また熱伝導率も若干減少し、その結果 $x = 0.75$ 試料で最大の $ZT = 0.64$ (@850K) を達成した。当日は第一原理計算による B の占有サイトの予測結果と合わせて発表し、占有サイトと熱電特性の関係を議論する。

参考文献

- 1) Y. Hayatsu *et al.*, *J. Solid State Chem.*, **193** (2012) 161.
- 2) A. Tominaga and T. Ito, *J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy*, **60** (2013) 354.
- 3) F. Izumi and K. Momma, *Solid State Phenom.*, **130** (2007) 15.

Table 1 : Electron carrier density of samples.

	undoped	$x = 0.75$
n (cm^{-3})	2.8×10^{19}	3.8×10^{20}

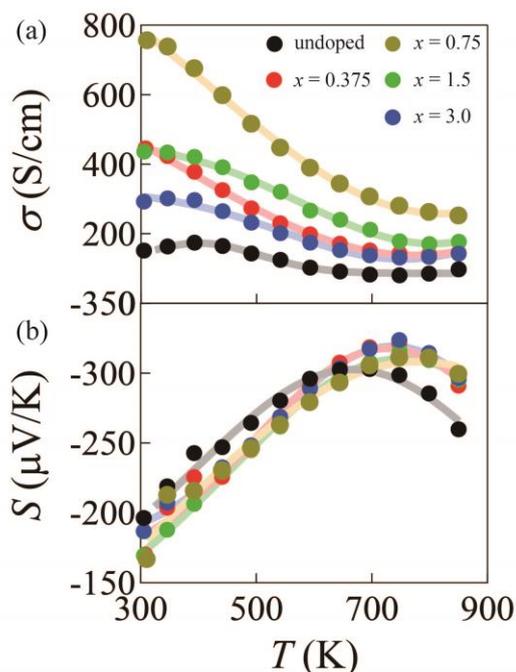


Fig.1 Temperature dependance of (a) electrical conductivity and (b) Seebeck coefficient.