

type-II クラスレート化合物 $K_8Sr_{16}M_{40}Ge_{96}$ ($M=Al, Ga$) の 作製と熱電的特性

Preparation and thermoelectric properties of type-II clathrates $K_8Sr_{16}M_{40}Ge_{96}$ ($M=Al, Ga$)

○宇都宮 卓, 岸本 堅剛, 赤井 光治, 浅田 裕法, 小柳 剛 (山口大院理工)

○S. Utsunomiya, K. Kishimoto, K. Akai, H. Asada, T. Koyanagi (Yamaguchi Univ.)

E-mail: kkishi@yamaguchi-u.ac.jp

緒言

最近, ゲスト原子に I 族元素と II 族元素を用いた Sn ベースの type-II クラスレート化合物の高温熱電特性を調査し, 高い移動度と Sn の理論最低値ほどの格子熱伝導率により, 中低温域で 1 程度の無次元性能指数 ZT を得ている¹⁾. 同様の特性を Ge ベースの type-II クラスレート化合物で得ることができれば, 高温域で高い熱電性能が見込まれる. しかし, これまで Ge ベースでは, ゲスト原子に I 族元素のみを用いた $Cs_8Na_{16}Ge_{136}$ などは作製されているが, キャリア密度が過多でゼーベック係数は金属並みであるため高い熱電性能は得られていない²⁾. 本研究では, より高いゼーベック係数を得ることを目的として, ゲスト原子に I 族元素と II 族元素を用いた $K_8Sr_{16}M_{40}Ge_{96}$ ($M=Al, Ga$) の作製を試み, その熱電的特性の評価を行った.

実験方法

試料の作製方法と特性評価方法は基本的に前報と同様である³⁾.

結果

Fig.1 に X 線回折測定の結果を示す. 異相として Ge, type-I クラスレートと $SrAl_2Ge_2$ が含まれるものの, 主相は type-II クラスレートであり, K-Sr-M-Ge ($M=Al, Ga$)系で type-II クラスレートを作製できることがわかった. 室温ゼーベック係数は $-29 \sim -84 \mu V/K$ に達した. 室

温格子熱伝導率は $20 \sim 22 \text{ mW}/(\text{cm K})$ であった. これは, Ge における理論最低値 $6.2 \text{ mW}/(\text{cm K})$ ⁴⁾ に比べて高い値であった. 今回作製した試料では, 低い格子熱伝導率が得られなかったため, 最大 ZT は $K_8Sr_{16}Ga_{40}Ge_{96}$ が 786 K において示した 0.43 にとどまった.

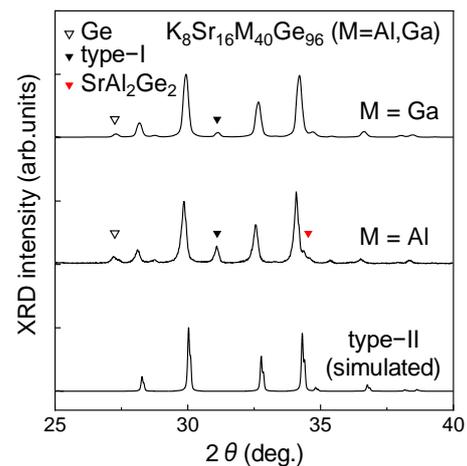


Fig.1 XRD patterns of type-II clathrate $K_8Sr_{16}M_{40}Ge_{96}$ ($M=Al, Ga$) samples.

参考文献

- 1) K. Kishimoto *et al.*, J. Appl. Phys. **118** (2015) 125103.
- 2) M. Beekman *et al.*, J. Mater. Chem. **18** (2008) 842.
- 3) 宇都宮 他, 第 62 回応用物理学会講演予稿集 (2015) 13a-A22-9.
- 4) D. G. Cahill *et al.*, Phys. Rev. B **46** (1992) 6131.

謝辞

本研究は, 科研費 26289377 および NEDO「熱電変換材料・デバイス高性能高信頼化技術開発」の助成を受けた.