

二重封止式温度勾配法を用いた SnSe 結晶の作製と熱電特性評価

Fabrication and Evaluation of Thermoelectric Property of SnSe Crystals Fabricated by Temperature Gradient Method with Double Tubes Seal

中部大工¹, 名大工² ○(B)寺社下 文也¹, (M2)辻岡 祐介², 田橋 正浩¹, 高橋 誠¹

後藤 英雄¹, 土屋 雄司², 一野 祐亮², 吉田 隆²

Chubu Univ.¹, Nagoya Univ.², °Fumiya Jishage¹, Yusuke Tsujioka², Masahiro Tahashi¹, Makoto Takahashi¹, Hideo Goto¹, Yuji Tsuchiya², Yusuke Ichino², Yutaka Yoshida²

E-mail: tahashi@isc.chubu.ac.jp

1. はじめに

近年, SnSe は熱電材料の変換効率を表す無次元性能指数 ZT が最大で, b 軸方向では 2.6 を, c 軸方向では 2.3 と高い値を示すことが報告された^[1]. しかし, a 軸方向では ZT が 0.8 と低い値を示すため, 結晶方位が揃った SnSe の作製が必要となる。

本研究では前報^[2]に引き続き, 単結晶基板上に SnSe 結晶を融液成長させ, SnSe の結晶性と熱電特性におよぼす熱処理条件の影響について調べた。また, SnSe は高い蒸気圧を有するため, 高温での熱電特性評価は難しい。そこで SnSe の熱電特性を高い温度まで測定可能な熱電特性評価装置を作製した。

2. 実験方法

底面が正方形 (10mm×10mm) の形状を有する石英容器の底に(100)MgO 基板を固定し, その上に Sn と Se の組成比が 1:1 とした SnSe 粉末を充填した。石英容器の内側とほぼ同程度のサイズを有する石英製のロッドを挿入し, 縦型管状電気炉内に上記試料をセットした。試料を 1050°C まで加熱し熔融させた。この温度で 60 分間保持した後, 680°C まで降温レートを 5°C/hour で冷却した。このとき, 試料の温度勾配は約 3.5°C/mm であった。

作製した試料を厚さ 1 mm 程度に加工した後, 結晶性の評価を X 線回折法, 組成比評価をエネルギー分散型 X 線分光法によって行った。また, 熱電特性評価については自作の装置を用いて 100°C~700°C までの温度範囲で電気伝導率とゼーベック係数を測定した。SnSe は高い蒸気圧を有するため, 電極となる箇所以外をセラミックボンドで覆うことで試料の蒸発を抑えた。

3. 実験結果および考察

作製した結晶は熱流の方向に対して垂直方向にへき開した。Fig. 1 に降温レート 5°C/hour で作製した SnSe 結晶のへき開面に対する $2\theta/\omega$ 回折パターンを示す。主として SnSe($h00$)面が配向していることがわかる。また, SnSe₂ のピークがわずかではあるが確認された。Fig. 1 から算出した a 軸長は 11.51 Å であり, [1] と比べて a 軸長は長かった。次に, Fig. 2 に作製した SnSe 結晶の電気伝導率を, Fig. 3 にゼーベック係数の測定結果を示す。電気伝導率, ゼーベック係数ともに[1]に比べて低い値となったが, その温度依存性は[1]に近い傾向が見られた。

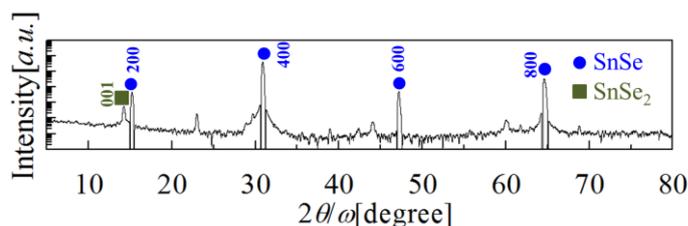


Fig. 1 XRD 2θ scan of SnSe crystal fabricated by temperature gradient method at cooling rate of 5°C/hour.

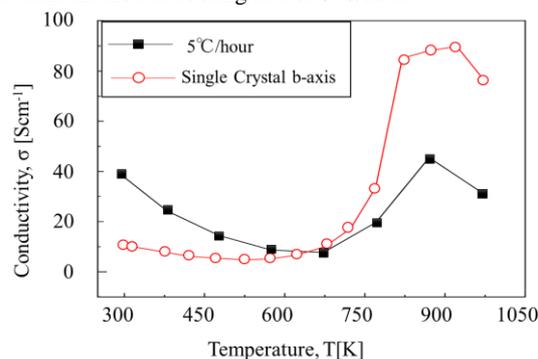


Fig. 2 Temperature dependences of conductivity of SnSe crystals.

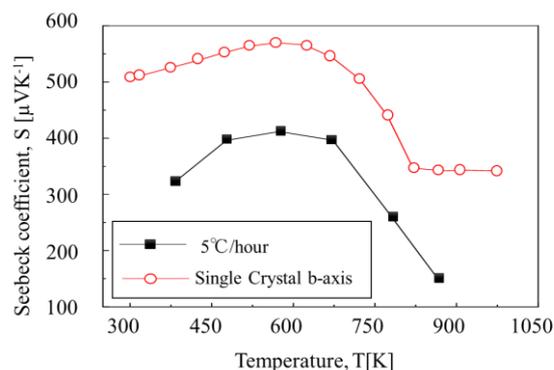


Fig. 3 Temperature dependences of Seebeck coefficient of SnSe crystals.

【謝辞】

本研究の一部は, 科学研究費補助金 (23226014, 25289358, 15H04252, 15K14301, 15K14302, 16K06277 及び 16H04512) および谷川熱技術振興基金からの助成を受けて実施したものである。

文献

[1] L. D. Zhao et al. : nature, **508** (2014) 373.

[2] 辻岡他:第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 14p-P22-10 (2016).