

# Si クラスレートにおける Au を含む多元素置換と熱電特性 Multiple Element Substitution Including Au and Thermoelectric Properties for Si Clathrate

山陽小野田市立山口東理大工, °(M1) 前島 理佐, 岡本 和也, 阿武 宏明\*

Tokyo Univ. Sci., Yamaguchi, °Risa Maejima, Kazuya Okamoto, Hiroaki Anno\*

\*E-mail: anno@rs.tusy.ac.jp

現在,  $\text{Ba}_8\text{Ga}_x\text{Si}_{46-x}$  クラスレートは低価格・低環境負荷な元素から成る熱電材料として注目されている. この系の Ga 固溶限界が  $x=15$  のため, キャリア濃度が最適値より高く性能改善の余地が残っている. これまでに Ga-P 同時ドーピング<sup>1)</sup>と高価数 Au を併用した多元素置換効果について報告した<sup>2)</sup>. 本研究では, ホスト格子の Ge 置換 (Si-Ge 混晶) 系における Au 置換による熱電特性への効果について調べた.

## 実験方法

アーク溶解と放電プラズマ焼結を併用して仕込組成  $\text{Ba}_{8.2}\text{Au}_x\text{Ga}_y\text{Si}_{23}\text{Ge}_z$  ( $x=0\sim6, y=16-3x, z=23-x-y$ ) の焼結体を作製した. 試料の評価として, 粉末 X 線回折測定, 熱電気的特性 (ゼーベック係数, 電気伝導率, Hall 係数および熱伝導率) の測定を行った.

## 結果と考察

XRD の結果から, 試料は主相がクラスレートであるが不純物相 Si を含むことが判明した. Au 置換によりクラスレート相の (3 2 0) 回折ピークが減少しており, Au は結晶構造の原子位置 6c サイトを優先占有することが示唆された.

Fig. 1 より, ゼーベック係数の符号から試料は Au 組成 Au の置換量を変化させることで, P 型・N 型材料の作製に成功した. Au 置換量に依存して電気伝導率と熱伝導率も変化した. さらに,  $\text{Ba}_8\text{Ga}_x\text{Si}_{46-x}$  試料,  $\text{Ba}_8\text{Ga}_x\text{Ge}_{46-x}$  試料と比較して, 格子熱伝導率が減少 (特に  $x=6$  で減少) することが判明した.

Fig. 2 より, Au 組成  $x=2, 6$  で熱電性能指数  $ZT=0.73$  となり,  $\text{Ba}_8\text{Al}_x\text{Si}_{46-x}$  の  $ZT$  の約 1.8 倍,

$\text{Ba}_8\text{Ga}_x\text{Si}_{46-x}$  の  $ZT$  の約 1.3 倍の向上を達成した.

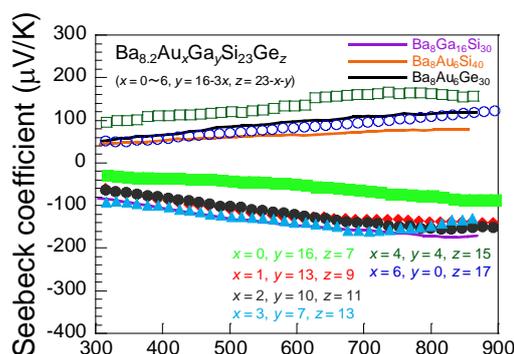


Fig. 1. Seebeck coefficient vs. temperature.

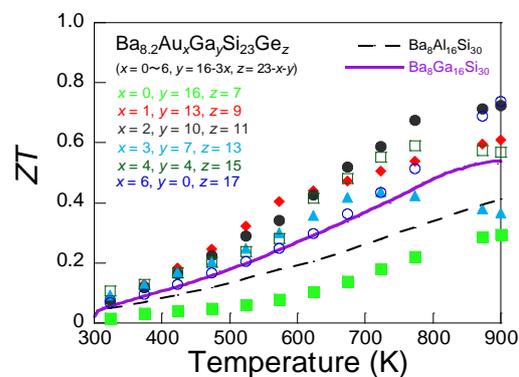


Fig. 2.  $ZT$  vs. temperature.

## 謝辞

この成果は NEDO の委託業務の結果得られたものである.

## 参考文献

- 1) H. Anno, et al., J. Electron. Mater. DOI: 10.1007/s11664-016-5219-5
- 2) Koji Akai et al., Trans. Mater. Res. Soci. Jpn. **29**, 3647 (2004).