

放電プラズマ焼結法で合成した Y および Te ドープ Mg₃Sb₂ の熱電特性

Thermoelectric Properties of Y- and Te-doped Mg₃Sb₂ Synthesized by SPS Method

大阪技術研[○]谷 淳一、品川 勉、千金 正也

ORIST,[○]Jun-ichi Tani, Tsutomu Shinagawa, Masaya Chigane

E-mail: tani@omtri.or.jp

【諸言】

マグネシウム系半導体は、資源豊富、軽量、安価であることから、熱電変換材料、太陽電池、赤外線センサーなどへの応用が期待されている。最近、Tamaki ら[1]、Zhang ら[2]により、高性能 n 型 Mg_{3+x}(Sb, Bi, Te)₂ (ZT=1.51–1.65)が発見され、既存の代表的な熱電材料の特性(ZT=1)を凌駕することが報告されている。Mg₃Sb₂系の n 型材料に関する報告例はこれまで少なく、さらなる高性能のための材料設計指針や熱電特性や輸送特性の詳細を明らかにする必要がある。本研究では、パルス通電加圧焼結法を用い、原料粉末から 1 段階プロセスで合成同時焼結を行った Y および Te ドープ Mg₃Sb₂の熱電特性について調べたので報告する。

【実験方法】

出発原料として Mg、Sb、Y₂O₃、Te を用いた。出発原料粉末を乳鉢でよく混合した後、黒鉛ダイス中に充填し、パルス通電加圧焼結法を用いて 50 MPa の加圧下、Ar 雰囲気中、973 K において 15 分間保持した。得られた焼結体の X 線回折、SEM/EDX、結晶方位解析 (EBSD)、電気抵抗率、ゼーバック係数、熱伝導率 (密度、熱拡散率、比熱)、および室温におけるホール効果測定を行った。

【結果と考察】

パルス通電加圧焼結法により、Mg と Sb の混合粉末から 1 段階プロセスで緻密な Mg₃Sb₂ 焼結体を作製することができた。Table 1 にパルス通電焼結法で作製した Mg₃Sb₂ 焼結体の室温での輸送特性を示す。Y₂O₃ および Te を添加した時、電子濃度は上昇し、電気抵抗率は低下した。Y₂O₃ は、Mg および Mg₃Sb₂ と Y₂O₃ の反応により、Y が Mg サイトに置換して n 型のドーパントとして機能した結果と考えられる。Y₂O₃ を添加した時の電子濃度は Te を添加した時よりも高く、Y の Mg₃Sb₂ 中への固溶限界値は Te よりも高いと考えられる。Y₂O₃ 0.5–1.5 mol%、Te 3–5 mol% を添加した時、773K 付近において熱電無次元性能指数(ZT)=1.0 の値を示した (Fig.1)。

Table 1 Transport properties of Mg₃Sb₂ at room temperature

Sample No.	Additives x ^{&} (mol%)	Carrier Type	Electrical resistivity (Ωcm)	Carrier concentration (cm ⁻³)	Mobility (cm ² /Vs)
1	—	N	8.80 × 10 ⁻²	8.69 × 10 ¹⁷	82
2	Te 0.25	N	2.06 × 10 ⁻²	4.75 × 10 ¹⁸	64
3	Te 0.5	N	1.32 × 10 ⁻²	6.36 × 10 ¹⁸	75
4	Te 1	N	6.61 × 10 ⁻³	1.19 × 10 ¹⁹	80
5	Te 3	N	5.17 × 10 ⁻³	1.49 × 10 ¹⁹	83
6	Te 5	N	5.88 × 10 ⁻³	1.51 × 10 ¹⁹	70
7	Te 8	N	1.59 × 10 ⁻²	7.81 × 10 ¹⁸	56
8	Y ₂ O ₃ 0.125	N	2.36 × 10 ⁻²	4.96 × 10 ¹⁸	53
9	Y ₂ O ₃ 0.25	N	1.07 × 10 ⁻²	1.53 × 10 ¹⁹	38
10	Y ₂ O ₃ 0.5	N	4.33 × 10 ⁻³	2.51 × 10 ¹⁹	57
11	Y ₂ O ₃ 1.5	N	1.92 × 10 ⁻³	7.64 × 10 ¹⁹	43
12	Y ₂ O ₃ 2.5	N	2.78 × 10 ⁻³	6.24 × 10 ¹⁹	36

& Molar ratio of Mg₃Sb₂/Additives = 1: x

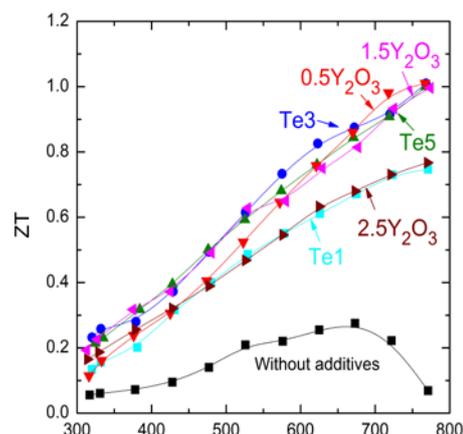


Fig.1 ZT of Mg₃Sb₂ with or without additive

【参考文献】 [1] H. Tamaki et al.: Adv. mater. 28 (2016) 10182-10187. [2] J. Zhang et al.: Nat. commun. 8 (2017) 13901.

【謝辞】 本研究は、平成 30 年度日本学術振興会の科学研究費補助金(基盤(C))(No.15K06520,18K04791)の助成を受けた。