

遷移金属を含む多元素置換 Ge クラスレートの熱電特性

Thermoelectric Properties of Multiple Element Substituted Germanium Clathrate

Containing a Transition Metal

山陽小野田市立山口東理大, [○](M1)古賀 雄大, 岡本 和也, 阿武 宏明Sanyo-Onoda City Univ., [○]Yudai Koga, Kazuya Okamoto, Hiroaki Anno

E-mail: anno@rs.socu.ac.jp

緒言

クラスレート化合物は Phonon Glass Electron Crystal の概念を実現する熱電材料の 1 つとして注目されている。Ba₈Cu_xGe_{46-x} は Cu の固有限界が $x = 5$ 程度のためキャリア濃度が高く、その最適化が課題である。本研究では、Ge 系クラスレートを多元素置換¹することで材料の熱電性能の向上を狙っており、高価数である遷移金属元素 Cu と Ga, P の元素置換において Ga 添加量の依存性を調査した。

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 Ba_{8.2}Cu_xGa_yGe_{46-x-y-z}P_z ($x = 5; y = 0\sim 3; z = 0, 1(\times 2)$)の焼結体を作製した。試料の評価として、粉末X線回折(XRD)、熱電気的特性(ゼーベック係数 S 、電気伝導率 σ および熱伝導率 κ) の測定を行った。

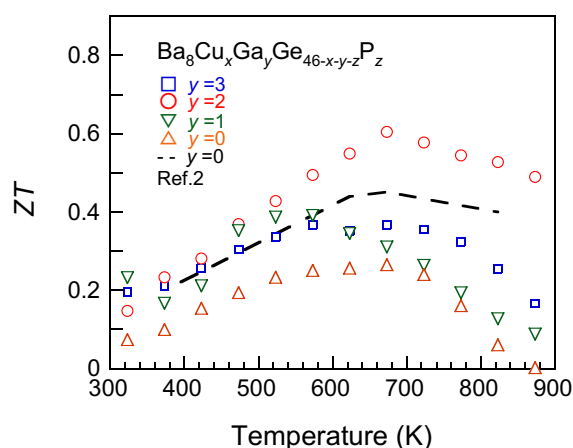
結果と考察

XRD の結果から、試料は主相がクラスレートであることを確認した。 $y = 2$ のとき、600~700 K でゼーベック係数が最大で $S = -212 \mu\text{V/K}$ であった。また Ba₈Cu₅Ge₄₁ の先行研究²よりも電気伝導率が改善され、 $\sigma = 258 \text{ S/cm}$ となった。Ga-P 同時ドーピングにおける出力因子が最大となる Ga 添加量の最適な値は $y = 2$ であり、そのときの出力因子 $PF = 12 \mu\text{W/cmK}^2$ であった。この値は Ba₈Cu₅Ge₄₁ の先行研究²の報告より 2.1 倍の向上を達成した。

熱伝導率は Ga 組成に殆ど依存せず、

Ba₈Cu₅Ge₄₁ の報告値²と同程度であった。

Fig. 1 は熱電性能指数 ZT の温度依存性である。Fig. 1 より、Ga 組成 $y = 2$ で $ZT = 0.63$ となり、Ba₈Cu₅Ge₄₁ の ZT の約 1.3 倍の向上を達成した。

Fig. 1. ZT vs. temperature.

結言

Ge クラスレートのホストを Cu, Ga, P で置換する手法により、熱電特性を制御し性能の向上に成功した。今後、Si クラスレートにおいても同様の最適化による性能向上を検討する。

謝辞

本研究は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務および JSPS 科研費 JP20K05136 の助成の結果得られたものである。

文献

1. H. Anno et al., Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **62**, 194-199 (2015).
2. X. Yan, et al., Phys. Rev. B, **87**, 115206 (2013).