

Mg 空孔欠陥の導入と Sb 置換による Mg₂Sn 単結晶の熱電性能向上

Enhancing Thermoelectric Performance of Mg₂Sn Single Crystals via Introduction of Mg Vacancy Defects and Sb-doping

東北大院工, °齋藤 亘*, 林 慶, 黄 志成, 宮崎 讓

Tohoku Univ., °Wataru Saito, Kei Hayashi, Zhicheng Huang, Yuzuru Miyazaki

*E-mail: wataru.saito.p2@dc.tohoku.ac.jp

1. 緒言

Mg 空孔欠陥 (V_{Mg}) を導入した Mg₂Sn 単結晶は低い格子熱伝導率 $\kappa_{lat} \sim 1.5$ W/mK at 650K を示す一方で、電気伝導率 σ が低い ($\sigma \sim 400$ S/cm at 650K) [1]. これを解決するため、我々は σ の飛躍的な向上が報告されている Sb 置換[2,3] の利用を考えた。そこで本研究では、 V_{Mg} の導入による κ_{lat} の低減効果と、Sb 置換による σ の向上効果を同時に発現させ、Mg₂Sn 単結晶の熱電性能向上を試みた。

2. 実験方法

Mg₂Sn_{1-x}Sb_x 単結晶 ($x = 0, 0.01, 0.02$) を溶融合成法によって作製した。原料の Mg, Sn と Sb をタンマン管に詰め、それを石英管 (内圧 = Ar 1.6 気圧) に封入した。以上の手法で作製した試料の V_{Mg} 量と熱電特性を測定した。

3. 結果と考察

単結晶 X 線回折の結果、作製した単結晶に V_{Mg} が存在することがわかった。また、 x の増加に伴い V_{Mg} 量は 12(3)%[1] から 5.3(13)%まで減少した。電子のキャリア密度 n は、 x の増加に伴い $1.25(1) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ [1] から $4.21(7) \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ まで増加した。 V_{Mg} 量 1% あたりの n の変化量は $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度であるため[1]、 x の変化による n の大きな増加は Sb 置換によるものと考えられる。

最も高い無次元性能指数 zT が得られた $x = 0.01$ 単結晶の 650K における熱電性能 (ゼーベック係数 S , σ と κ_{lat}) を、Mg₂Sn_{0.99}Sb_{0.01}

多結晶試料 [2] と比較すると、 S は 170 $\mu\text{V/K}$ であり、多結晶試料に比べ $\sim 15\%$ 低かった。これは、 n が多結晶試料に比べて $\sim 10\%$ 高い ($n = 2.05(1) \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) ためと考えられる。また、 σ は 1680 S/cm であり、多結晶試料に比べ $\sim 40\%$ 高かった。これは、移動度 μ が多結晶試料に比べて $\sim 30\%$ 高い ($\mu = 120 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) ためと考えられる。一方、 κ_{lat} は 2.1 W/mK であり、多結晶試料に比べ $\sim 15\%$ 低かった。これは、 V_{Mg} の導入によって点欠陥散乱が増加したためと考えられる。 zT は 0.72 を示し、多結晶試料[2] よりも高かった (Fig. 1).

参考文献

- [1] W. Saito *et al.*, *Sci. Rep.*, **10**, 2020 (2020).
- [2] W. Liu *et al.*, *Energy Environ. Sci.*, **9**, 530 (2016).
- [3] J. Xin *et al.*, *Small Methods*, **3**, 1900412 (2019).

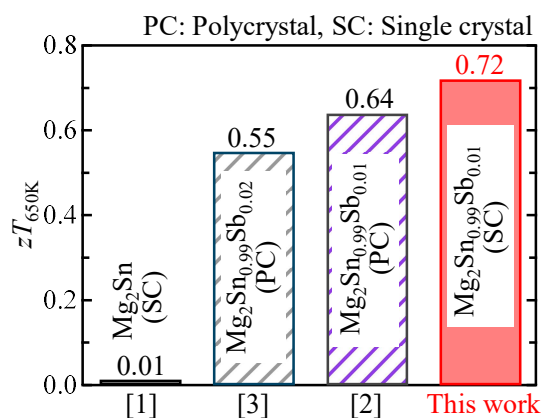


Fig. 1: Comparison of zT_{650K} of the present Mg₂Sn_{0.99}Sb_{0.01} single-crystal ingot with reported Mg₂Sn based samples[1-3].

謝辞

本研究は、JSPS 特別研究員奨励費 No. 20J10512 の助成を受けたものです。