

Mg 空孔欠陥の導入による $Mg_2Sn_{1-x}Sb_x$ 単結晶の熱電性能向上

Enhancing thermoelectric properties of $Mg_2Sn_{1-x}Sb_x$ single crystals via introducing Mg vacancies



東北大院工, ^{○(DC)}齋藤 亘*, 林 慶, 黄 志成, 宮崎 讓

Tohoku Univ., ^{○(DC)}Wataru Saito, Kei Hayashi, Zhicheng Huang, Yuzuru Miyazaki

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

1. 緒言

Sb で部分置換した Mg_2Sn 多結晶は高い出力因子 ($4.5 \text{ mW/mK}^2 @ 650 \text{ K}$) を示す一方で、格子と両極性拡散による熱伝導率 $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ が高い ($2.71 \text{ W/mK} @ 650 \text{ K}$) ことが知られている^[1]. 最近、我々は Mg 空孔欠陥 (V_{Mg}) の導入が Mg_2Sn 単結晶の $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ の低減に有効であることを明らかにした^[2]. 本講演では、 V_{Mg} を導入した $Mg_2Sn_{1-x}Sb_x$ 単結晶の熱電性能を報告する。

2. 実験方法

$Mg_2Sn_{1-x}Sb_x$ 単結晶 ($x = 0, 0.01, 0.02$) は溶融合成法によって作製された。原料の Mg (4N, grain), Sn (4N, powder), と Sb (5N, powder) をタンマン管に詰め、さらに石英管に封入した。石英管内部の圧力を Ar 1.6 気圧とした。 V_{Mg} 量の評価と熱伝導率の測定には、それぞれ単結晶構造解析とレーザーフラッシュ法を用いた。

3. 結果と考察

単結晶構造解析の結果、Sb 置換量 x の増加に伴い V_{Mg} 量は 12 (3) % から 5.3 (13) % まで減少し、格子定数は $6.7576 (2) \text{ \AA}$ から $6.7719 (11) \text{ \AA}$ まで増加することがわかった。以上の結果は、格子定数が増加するほど空孔欠陥の形成エネルギーが低下するという Si で報告されている傾向^[3] と矛盾しない。

Fig. 1 に $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ の温度依存性を示す。 κ_{Bip} の寄与が少ない 400 K 以下では、作製した試

料の $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ の値は同程度であった。これは、Sb 置換によって点欠陥散乱が増加するものの、 V_{Mg} 量が逆に減少したため、結果的に κ_L が変わらなかったためと考えられる。一方、450 K 以上では、 x の増加に伴い $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ の値は減少した。この結果は、Sb 置換によって両極性拡散が起こる温度が上昇し、 κ_{Bip} が減少したためと考えられる。最小の $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ は $x = 0.02$ 単結晶で得られ ($2 \text{ W/mK} @ 650 \text{ K}$)、全ての温度域で同じ置換量の多結晶^[1] よりも低い値を示した。つまり、 V_{Mg} の導入によって点欠陥散乱が増加したことが示唆された。

参考文献

- [1] J. Xin *et al.*, *Small Methods*, **3**, 1900412 (2019).
- [2] 齋藤亘, 林 慶, 宮崎讓, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 19p-E307-8 (2019).
- [3] V. Gusakov *et al.*, *Physica B*, **404**, 4558

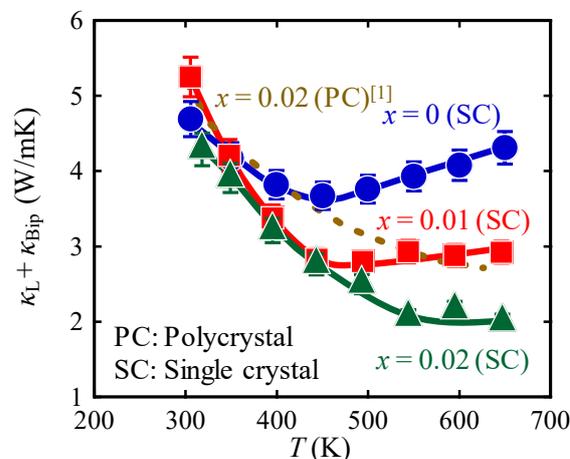


Fig. 1: Temperature dependence of $\kappa_L + \kappa_{Bip}$ of prepared single crystals