

CrSi₂ の格子熱伝導度の粒径依存性Particle size dependence of lattice thermal conductivity of CrSi₂¹中部大学, ²豊田工業大学, [○]原惇¹, Seongho Choi², 田橋正弘¹, 後藤英雄¹, 松波雅治², 竹内恒博²¹Chubu Univ., ²Toyota Tech. Inst., [○]Atsushi Hara¹, Seongho Choi², M. Tahashi¹, H. Goto¹, M. Matsunami²,
and T. Takeuchi²

E-mail: ee16054-5721@sti.chubu.ac.jp

研究背景

省エネルギー社会に貢献する技術として、温度差から電力を発生できる熱電発電が注目されている。コストや安全性も重要であるため、安価で、環境にやさしく、高効率な熱電材料の開発が強く求められている。

熱電材料の性能は無次元性能指数 $ZT = S^2 \sigma T \kappa^{-1}$ で評価される。 S , σ , κ , T はゼーベック係数、電気伝導度、熱伝導度、絶対温度である。大きな ZT を得るためには、 κ が小さく、 S および σ が大きい材料を用いれば良い。

CrSi₂ は S および σ が大きい材料であるが、 κ が大きく(室温で約 $9 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$)、実用的な熱電材料と見なされていない。⁽¹⁾電子輸送現象に影響を与えずに、CrSi₂ の格子熱伝導度を低減することが可能であれば、 ZT の著しい向上が見込まれる。そこで、本研究では、CrSi₂ の格子熱伝導度を結晶粒径の微細化により低減させる指針を得るために、その粒径依存性を調査した。

実験方法

化学量組成 (CrSi₂) になるように Si (純度 99.999%) および Cr (99.99%) を秤量した。アーク溶解法によって単相の CrSi₂ を作製した。高エネルギー遊星型ボールミル (Fritch P7, 以下 BM と省略して示す) を用いて粉砕し、放電プラズマ焼結法を用いて焼結した。焼結した試料に対して、粉末 X 線回析実験を行い、観測された回析ピークの半値幅よりシェラーの式を用いて平均粒径を見積もった。密度はアルキメデス法、熱伝導度は Laser flash 法、電気抵抗率は四端子法、ゼーベック係数は定常法で測定した。

また、フォノン分散及び格子熱伝導度を、Phonopy 及び Phono3py を用いて計算した。

結果

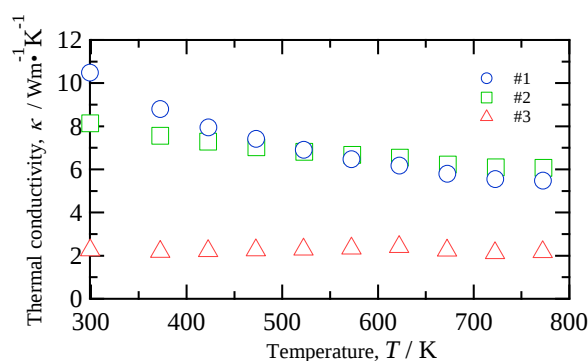
粉砕条件と焼結条件を変化させることで、3 種類の異なる粒径の試料を作製することに成功した。評価に用いた試料の平均粒径、及び、密度を Table 1 に示す。試料#3 の密度が低下しているが、これは粒径を小さく維持するために焼結温度を下げたためである。

作製したバルク試料の熱伝導の温度依存性を Fig. 1 に示す。300 K において、試料#1 は $10.5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ を示した。一方、試料#2 は $8.1 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 、試料#3 は $2.3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ を示した。BM を用いて、試料の平均粒径を小さくすることで、熱伝導度の低下が確認できた。試料#3 における熱伝導度の著しい低下は、粒径の影響に加え、密度が小さくなっていることに起因している。

試算より得られた格子熱伝導度により、試料#1 と試料#2 の熱伝導度の温度依存性の違いを定量的に説明できることがわかった。計算結果とその解釈は、講演にて詳細に報告する。

Table.1 Particle size and density of the samples

Sample	Particle size (nm)	Density (g/cm ³)
#1	75	4.75
#2	35	4.94
#3	25	4.18

Fig.1 Thermal conductivity of CrSi₂

参考文献

1) Y. Ohishi, *et al.*, J. Phys. Chem. Solids., 2015, **87**,153