

二重管封入法で作製した Zn_4Sb_3 の特性評価

Characterization of Zn_4Sb_3 fabricated by Double Tubes Seal Method

中部大工¹, 豊田工大² [○](B) 尾関 一樹¹, 田橋 正浩¹, 竹内 恒博², 高橋 誠¹, 後藤 英雄¹

Chubu Univ., Toyota Tech. Inst.², [○]Kazuki Ozeki¹, Masahiro Tahashi¹, Tsunehiro Takeuchi²,

Makoto Takahashi¹, Hideo Goto¹

E-mail: tahashi@isc.chubu.ac.jp

1. 研究背景

β - Zn_4Sb_3 は毒性の少ない元素で構成される p 型半導体で, 673K 付近で性能指数 $ZT=1.3$ [1] を示す高い熱電変換性能を有する熱電材料として注目されている。

構成元素である亜鉛は高い蒸気圧を持つため, 一般的な熔融凝固法では亜鉛は蒸発して組成ズレをきたしてしまう。この対策として原料を真空封入することで組成ズレを抑制する方法がとられている。

我々はより簡便な方法として二重管封入法を提案する。一方の試験管の外径が他方の試験管の内径にはほぼ一致する 2 種類の試験管を準備し, この中に試料を充填するとともに軽く封入する。この方法で組成ズレの少ない Zn_4Sb_3 を作製しその特性を評価したので報告する。

2. 実験方法

原料に Zn (純度 99.99%, 粒径 75 μm , 高純度化学研究所) と Sb (純度 99.9%, 粒径 45 μm , 高純度化学研究所) の粉末を用いた。これらのモル比が $\text{Zn}:\text{Sb}=7:5$ となるように混合し, 得られた混合粉末を内径が 10mm の石英試験管に充填した。その上から外径 10mm の石英試験管を挿入した。この試験管をさらに ϕ 30mm の石英反応管の中に設置し, 反応管内部の雰囲気を窒素で充填した。窒素流量 100ml/min のもとあらかじめ 660 $^{\circ}\text{C}$ に加熱された電気炉内に石英反応管を投入し, 15 分間後に石英反応管を電気炉外に取り出すことで急冷した。

得られた試料の結晶構造解析には X 線回折装置 (XRD), 組成比分析にはエネルギー分散型 X 線分光装置 (EDX), 電気特性測定にはホール効果測定装置を用いた。

3. 実験結果

Table 1 に得られた試料の組成分析結果を示

す。Zn と Sb の組成比 Sb/Zn は 0.75 を示し, ストイキオメトリな組成であることが分かった。石英試験管で軽く封入することで Zn の蒸発を大きく抑制することができた。また室温における電気特性評価の結果を Table 2 に示す。表中には試料の測定結果とともに $ZT = 1.3$ を示した試料の電気特性[1]も併せて載せている。本研究で得られた試料の抵抗率は文献値と一致した。移動度とキャリア密度の値については文献値と少し異なる値を示したが, おおよそ同じ値が得られたと考えている。

他の熔融・凝固の条件による影響や熱電特性については当日の講演にて報告する。

Table 1 Elemental compositions determined by EDX analysis.

Composition [at.%]		Atomic ratio
Zn	Sb	Sb/Zn
57.16	42.84	0.75

Table 2 Electrical properties measured at room temperature.

	Resistivity	Mobility	Carrier concentration
	ρ [$\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$]	μ [$\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$]	n [cm^{-3}]
Sample	2.1	68.2	5.5×10^{19}
Ref. [1]	2	30	9×10^{19}

謝辞

本研究の一部は, 科学研究費補助金 (22K04691) および公益財団法人 岩谷直治記念財団からの 助成を受けて実施したものである。ここに記して謝意を表する。

参考文献

[1] T. Caillat, J.-P. Fleurial, A. Borshchevsky, J. Phys. Chem Solids, **58**, 1119-1125 (1997).