

ハーフ・ホイスラー合金 TiNiSn の Sb 置換効果と熱電特性

Sb substitution effect and Thermoelectric properties of half-Heusler alloys TiNiSn

横国大理工¹, 防衛大材料²,[○](M1)阿部 航佑¹, (B)熊谷 爽¹, 中津川 博¹, 岡本 庸一²

Yokohama National Univ.¹, National Defense Academy²

Kosuke Abe¹, Sho Kumagai¹, Hiroshi Nakatsugawa¹, Yoichi Okamoto²

E-mail: abe-kosuke-dx@ynu.jp

ハーフ・ホイスラー合金 TiNiSn は中温域で高いゼーベック係数の絶対値を持ち、熱電材料として有望である¹⁾。熱電性能を示す指標である無次元熱電性能指数 ZT を向上させるにはゼーベック係数の増大、電気抵抗率及び熱伝導率の低減が有効であり、その方法として異なる価電子を持つ元素のサイト置換がある。本研究は TiNiSn の Sn サイトを Sb で置換し、価電子濃度を変化させ、Sb 置換効果の解明と ZT の向上を目的とする。

Sb 置換量は 0.05 まで 0.01 ずつ増加させて作製した。試料は Ti(99.9%up), Ni(99.9%up)を化学量論組成で秤量し、Sn(99.9%up)及び Sb(99.999up)のみ蒸発量を考慮して組成よりもそれぞれ 2 wt%, 1 wt% 多く加え、真空アーク溶解装置を用いてアルゴン雰囲気下でインゴットを作製した。この際、均質化のため試料を 3 回反転した。インゴットは放電加工を用いて 7mm×7mm×1.5mm に切り出したのち、石英管に真空封入して 800°C, 168h の熱処理を行った。熱処理後の試料は粉末 X 線回折を行い、得られた結果から RIETA-FP を用いてリートベルト解析を行った。電気抵抗率は van der Pauw 法を用い、ゼーベック係数は定常直流法を用いて測定した。熱伝導率は一次元熱流投入法により 350~650°C の温度範囲で測定し、最小二乗近似して得られた値を用いて最終的に ZT を算出した。

Fig. 1 に作製した試料の 395K までの ZT の温度依存性を示す。Sb 置換した試料は総じて ZT が増大し、395K で最も大きい ZT は $x=0.01$ の時 $ZT=0.21$ で Sb 置換していない試料と比較して約 2.1 倍の値になった。 ZT が増大した理由は、Sn よりも価電子数の大きな Sb を置換したことでキャリア濃度が増加し、抵抗率が低下したためと考えられる。

Sb 置換により価電子濃度を変化させることで ZT が向上した。更なる向上には Sb 置換量に伴い増大した熱伝導率の低減が有効であると考えられる。熱伝導率を格子成分とキャリア成分に分離すると格子成分が支配的なことから格子熱伝導の低減により ZT が増大する可能性が予想されることが分かった。

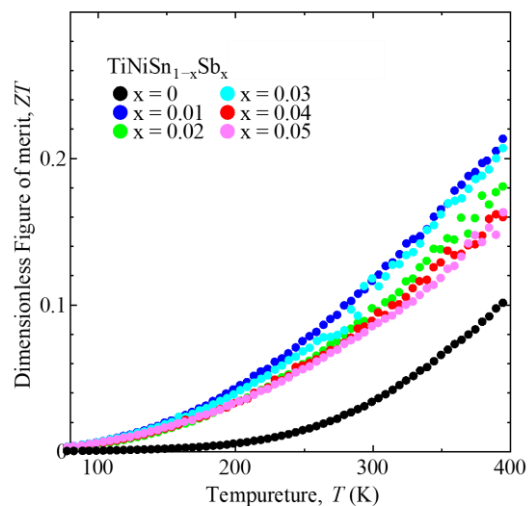


Fig.1 Temperature dependence of Dimensionless Figure of merit for $\text{TiNiSn}_{1-x}\text{Sb}_x$.

参考文献

- 1) S. Bhattacharya, A. L. Pope, R. T. Littleton, Terry M. Tritt, V. Ponnambalam, Y. Xia, and S. J. Poon, Appl. Phys. Lett. **77**, 2476 (2000).