

中温域($T \leq 800\text{K}$)におけるハーフ・ホイスラー合金 $\text{TiNiSn}_{1-x}\text{Sb}_x$ ($0 \leq x \leq 0.1$)の熱電特性 Thermoelectric properties of half-Heusler alloys $\text{TiNiSn}_{1-x}\text{Sb}_x$ ($0 \leq x \leq 0.1$) in the mid-temperature range ($T \leq 800\text{K}$)

○阿部航佑¹, 熊谷爽¹, 中津川博^{1,*}, 岡本庸一²

¹横浜国立大学, 〒240-8501 神奈川県横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-5

²防衛大学校, 〒239-8686 神奈川県横須賀市走水 1-10-20

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

緒言

クラーク数の大きい元素を使用したハーフ・ホイスラー合金 TiNiSn は環境負荷が小さい熱電材料であり、疑ギャップを持つことで高い出力因子を有する熱電材料として知られている¹⁾。本研究では TiNiSn の Sn サイトの x を Sb で置換することで価電子濃度(VEC)を $6+3/x$ と変化させて熱電性能の向上を試みた。

実験方法

Sb 置換量 x は 0.01 ずつ 0.10 まで変化させて 10 種類の試料を作製した。蒸気圧の高い Sn, Sb 以外は化学量論比に基づき秤量し、Ar 雰囲気下でアーク溶解してインゴットを作製した。インゴットは放電加工により板状に切り出した後に石英管中で真空封入し、 800°C で 168h の熱処理を行った。熱処理後の試料は粉末 X 線回折によりリートベルト解析を行い、SEM-EDX 分析を行って、目的のハーフ・ホイスラー単相試料であることを確認した。また、熱電特性は電気抵抗率 ρ 、ゼーベック係数 S 及び熱伝導率 κ を測定した。熱伝導率 κ は $50\sim 690^\circ\text{C}$ の温度範囲で測定し、最小二乗近似した値を用いて ZT を評価した。

結果と考察

Fig. 1 に作製した試料の ZT の温度依存性を示す。 x の増加に従って ZT は増大したが、 $x \geq 0.06$ 以降では減少に転じた。これはキャリア濃度が大きくなり、電気抵抗率 ρ の低下と同時にゼーベック係数 S の絶対値も低下したためであると考えられる。また、 x の増加に従って、

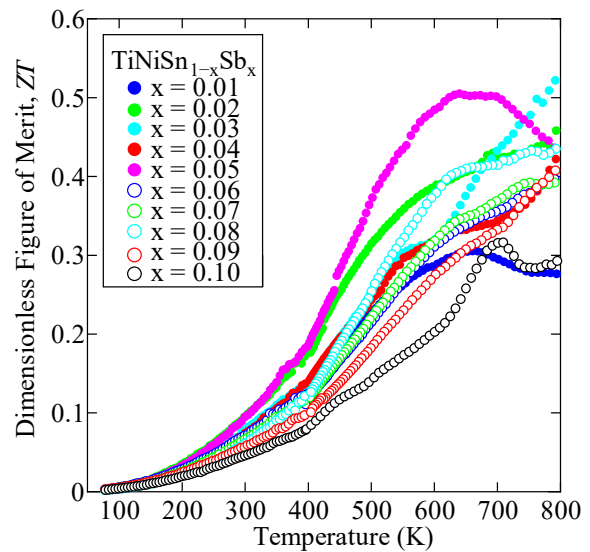


Fig. 1. The temperature dependence of ZT for $\text{TiNiSn}_{1-x}\text{Sb}_x$.

キャリア熱伝導率は増加し格子熱伝導率は低下するが、 $x \geq 0.06$ の $T \geq 500\text{K}$ では、キャリア熱伝導率の割合が多数を占めるので、熱伝導率の低減による ZT の向上は $x \leq 0.05$ に限定されることが分かった。

結言

格子熱伝導率の低減により $x \leq 0.05$ で ZT の更なる向上が期待される。 $\text{TiNiSn}_{0.95}\text{Sb}_{0.05}$ は 700K において $ZT \approx 0.52$ の極大値を取り、これは TiNiSn の 700K における ZT 値¹⁾と比較して約 1.8 倍の向上である。

参考文献

- 1) S. W. Kim, Y. Kimura, and Y. Mishima, *Intermetallics*, **15**, pp. 349-356(2007).