

受入年度：2022 年度 前期・後期・随時

提出日： 2023 年 5 月 29 日

共同利用の種類： 国際共同利用・一般共同利用・設備共同利用・ワークショップ

課題名：6 軸プレスを活用した高温高圧下における熱電材料のパワーファクター測定

共同研究員氏名： 森 嘉久

所属・職名： 岡山理科大学・教授

分担者氏名： _____

分担者所属・職名： _____

研究報告・ワークショップ実施報告：

シリサイド半導体である Mg_2Si は、毒性がなく、地殻中に豊富に埋蔵されていることから、環境に優しい半導体として期待されている。さらに、700K 近傍の中温領域における発電効率がいいので、車載用熱電モジュールの開発材料としても注目されている。 Mg_2Si の常温での結晶構造は、立方晶のアンチフルオライト (CaF_2) 型構造 (空間群#225 $Fm-3m$, $Z=4$) であるが、結晶中心に大きな格子間空隙が存在するため、圧力によってその電子状態や熱電性能が大きく変化する可能性がある。実際にこの試料に対する圧力依存性の熱電性能実験が実施されており、パワーファクターが圧力印加に伴い上昇し、およそ 2.0 GPa 辺りで常圧時の 8 倍に増加すると報告している。そこで本共同利用研究では、これまでデュアルヒーティングシステムによる熱電性能測定装置として開発してきた 6 軸超高压発生装置(6UHP-70)を活用して、高温高圧下でのパワーファクターの依存性を測定し、比較検討することにした。また装置の圧力領域を 2.5GPa までに限定した高压セルを設計することによって、高压経験のない学生でも容易に高精度で熱電性能の測定が可能な装置開発も目指した。この高压セルの場合、6-6 型の加圧方式を採用しており、二段目の 6 つのアンビルを高精度に組み上げることが重要となるが、そのアンビルガイドおよびアンビル間のガスケットを一体もの

として3Dプリンタで製作することにより、ガスケットレスの高圧セルを組み上げることが可能となった。

試料としてはAlドーピングしたMg₂Si熱電材料をSPS焼結したもので、それを直径3.0mm、高さ2.2mmのサイズに成形して試料室に封入し、圧力1.0GPa、1.5GPa、2.0GPa、2.5GPaの各圧力に対して、473K~773Kの温度範囲で熱電性能測定としての熱起電力測定と電気抵抗測定を行った。熱起電力測定は試料内に温度差をつけるが電気抵抗測定としては試料内に温度差が無い方が好ましい。このような測定の場合は、試料内の温度差が制御可能なデュアルヒーティングシステムが活躍する。

Fig. 1には測定温度範囲で50Kおきの測定温度におけるゼーベック係数の圧力依存性を示している。ゼーベック係数は1.5GPaまでの圧力印加に伴い減少し、その後増加する傾向が見られた。一方、電気抵抗率の圧力依存性の結果をFig.2に示すが、この測定においても、圧力印加とともに電気抵抗率は減少し、その後、ほぼ一定の値になることが分かった。尚、この測定において試料の形状が圧力によってほとんど変化しないと仮定して電気抵抗率を算出している。

熱電材料のパワーファクターは

$$P = S^2 \sigma = S^2 / \rho \quad (\text{eq.1})$$

の式により求まる。上記の測定結果をeq.1に代入することにより求めたパワーファクターの結果を、Fig.3に示す。測定する温度によってパワーファクターの値は異なるが、圧力増加に伴いパワーファクターが1.5GPaまでは上昇し、その後減少する傾向はみられた。また温度が573.15Kの時が最も圧力に対する変化が大きく、1GPaから1.5GPaまでの圧力増加に対してパワーファクターは7倍の増加を示した。この実験結果は報告されている結果と非常に良い一致を示したことになる。

研究成果の一部は、第63回高圧討論会で報告したが、2023年度に開催されるICPAC 2023においても発表することになっている。

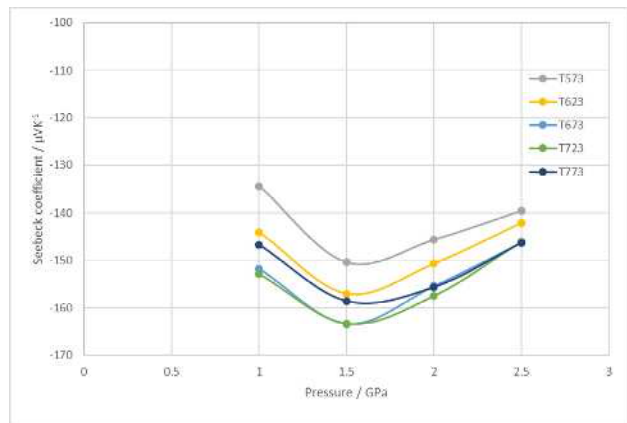


Fig. 1. Pressure dependence of Seebeck coefficients on Al-doped Mg₂Si at various temperature. Seebeck coefficient tends to decrease up to 1.5 GPa, and increases thereafter.

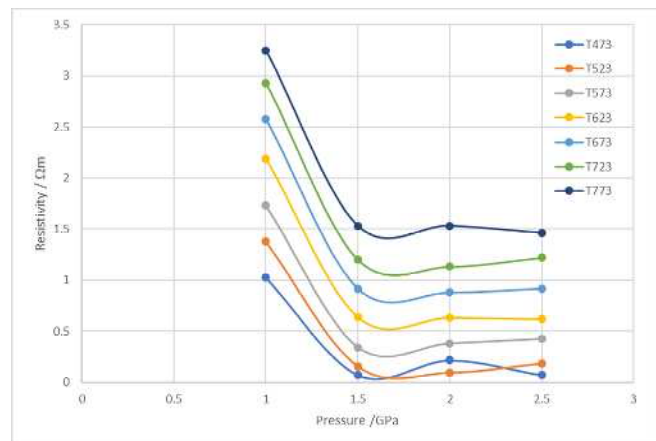


Fig. 2. Pressure dependence of resistivity on Al-doped Mg₂Si at various temperature. The resistivity decreases up to 1.5 GPa.

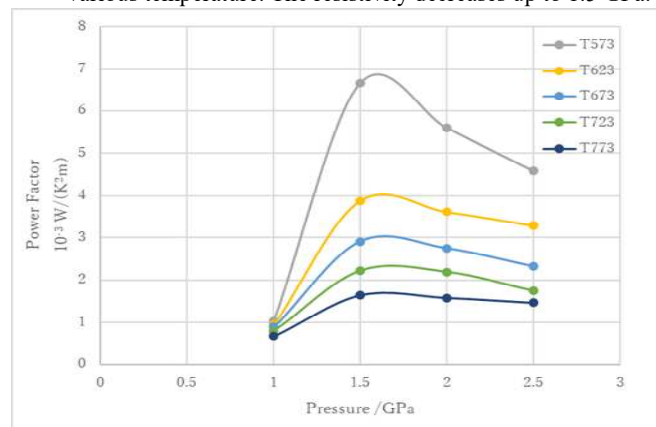


Fig. 3. Pressure dependence of power factor on Al-doped Mg₂Si at various temperature. The value of power factor increases up to 1.5 GPa and then begin to decrease with increasing pressure.