

受入年度：2020, 2021(延長)年度 前期・後期・随時

提出日： 2022年 5月 16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： 高温高圧下における  $Mg_2Si$  熱電材料のパワーファクター

共同研究員氏名： 森嘉久

所属・職名： 岡山理科大学・教授

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、500K 以上の熱電材料としての利用も期待されている。 $Mg_2Si$  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、中心に大きな格子間空隙が存在する。したがって、この結晶は圧力によって大きく変化する可能性がある。圧力によって結晶構造が大きく変化するため、電子状態や熱電性能も変化すると考えられるので、本共同利用研究では6軸超高压発生装置(6UHP-70)を活用した高温高圧下での熱電性能測定装置を立ち上げの研究を継続的に実施してきた結果、デュアルヒーティングによる加熱システムの立ち上げが終了し、このシステムを活用した  $Mg_2Si$  熱電材料の高圧下における熱電性能の測定が可能となった。また圧力領域を2.5GPa までに限定した高圧セルを設計することで、高圧経験のない人でも容易にある程度の精度で測定することが可能になった。この高圧セルの場合、6-6型で加圧する方式を採用しているため、6つのアンビルやガスケットを高精度に組み上げることが測定精度を高めることになるため、これまではNC加工したケミカルウッドをアンビルのサポート材として利用していた。ケミカルウッドは容易にNC加工する



Fig. 1. Photograph of Anvil support for 6-6 type pressure cell made by 3D printer.

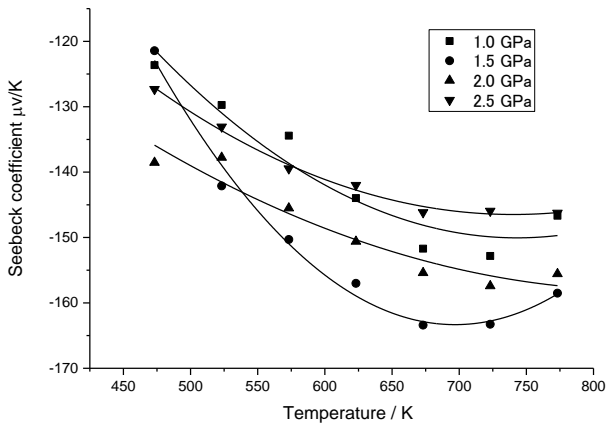


Fig. 2. Temperature dependence of Seebeck coefficients on Al-doped Mg<sub>2</sub>Si under high-pressure. Seebeck coefficient tends to decrease with temperature but does not vary monotonically with pressure.

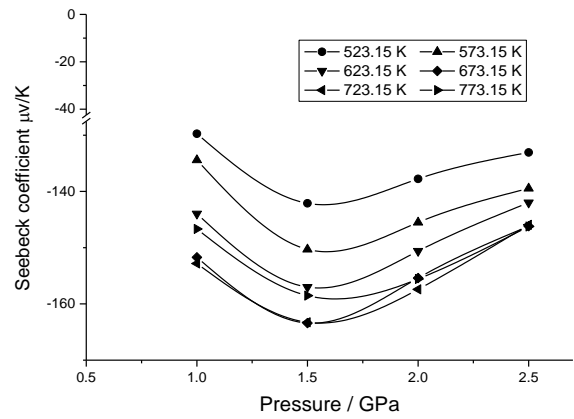


Fig. 3. Pressure dependence of Seebeck coefficients on Al-doped Mg<sub>2</sub>Si at high temperature. The value of Seebeck coefficient at various temperature decrease up to 1.5 GPa and then begin to increase with increasing pressure.

ことが可能であるが、複雑な設計となれば NC 加工機も上位機種を必要とするため、上下のアンビルに対してのみのサポートであった。そこで今回の研究課題においては Fig.1 に示すように、3D プリンタで製作したアンビルガイドを使用することを試みた。この場合、3次元の設計に対しても容易に対応することが可能なため、より精細な設計をすることでほぼ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。ただし、アンビルサポート材の変更に伴う圧力校正などが課題として残っており、早急に実施していく。

このセルを使用して SPS 焼結された Al ドープした Mg<sub>2</sub>Si 試料の高圧下での熱電性能測定を行った。3 mm φ、高さ 2.2 mm のサイズに成形した試料を 16.5 mm<sup>3</sup> のパイロフィライトキューブ高圧セルの試料部にセットし、1.0 GPa、1.5 GPa、2.0 GPa、2.5 GPa の圧力に対して、473 K~773 K の温度範囲で熱起電力測定を行った。

Fig.2 には高圧力下におけるゼーベック係数の温度依存性を示している。ゼーベック係数は温度によって減少する傾向があるが、圧力によって単調に変化することはない。Fig.3 に示すように圧力の関数としてゼーベック係数をプロットした。各温度におけるゼーベック係数の値は、1.5 GPa まで減少し、その後、圧力の上昇とともに増加し始めた。この 2.5 GPa までの圧力下でのゼーベック係数の急激な変化は、これまでの報告と一致する。一方、電気伝導度の圧力依存性についても同じ圧力、温度領域で測定したが、その結果はゼーベック係数の結果と同様に、圧力に対して一様に単調変化せず、1.5 GPa までは減少するものの、それ以上の圧力では変化しなかった。双方の結果からパワーファクターを算出することができるが、その結果は、1.5 GPa の圧力を境にして傾向が異なることが明らかとなった。

この研究成果の一部は、第 62 回高圧討論会にて報告したが、2022 年度に開催される APAC Silicide 2022 においても発表することになっている。