

クラスレート化合物 $Ba_8Ga_{16}Sn_{30}$ 及び置換系の熱電物性

広島大院先端物質科学研究科

才賀裕太, 末國晃一郎, 山本拓也, 高島敏郎

カゴ状物質であるクラスレート化合物は、半導体的電子構造のためにゼーベック係数 S が大きく、しかも、ゲストの非調和振動により熱伝導率が極めて低いために、高性能熱電変換材料の候補となっている。本研究で対象としたVIII型構造のクラスレート $Ba_8Ga_{16}Sn_{30}$ (BGS)は、GaとSnの形成する12面体がBaを内包する[1]。このBGSの特長は自己フラックスとしてGaとSnを用いることで、単結晶試料のキャリアをp-type (Ga)とn-type(Sn)とに作り分けることができる点である[2]。さらに、フラックス量を調節することでGaとSnの組成比を細かく変化させ、キャリア密度を制御できると期待された。

そこで、本研究では熱電性能を向上させる目的で、GaとSnのそれぞれの量を変化させてキャリア密度の最適化を試みた。育成した単結晶の S の温度依存性($300 < T < 600$ K)をFig. 1に示す。そのフラックス量を増やしていくと、 S の絶対値は減少するとともに、その極大を示す温度が上昇する。この極大はバンドギャップを超えたキャリアの熱励起に起因しており、その大きさは約0.36eVと見積られる。Fig. 2には300Kの S を育成時の余分なフラックス量に対してプロットした。p型とn型の S の絶対値がフラックス量の増加とともに直線的に減少していることから、それぞれ正孔と電子のキャリアが系統的にドーピングされたことが分かる。これらに加えてSbでSnの一部を置換した単結晶試料も育成し、 S 、電気抵抗、熱伝導率を300-600Kで測定した。この置換によって無次元熱電変換性能指数は1を超えた。

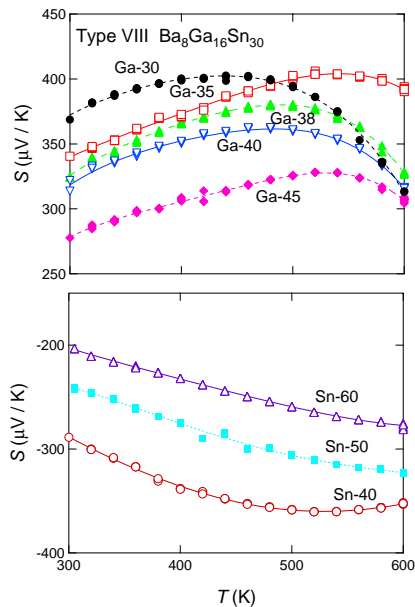


Fig. 1

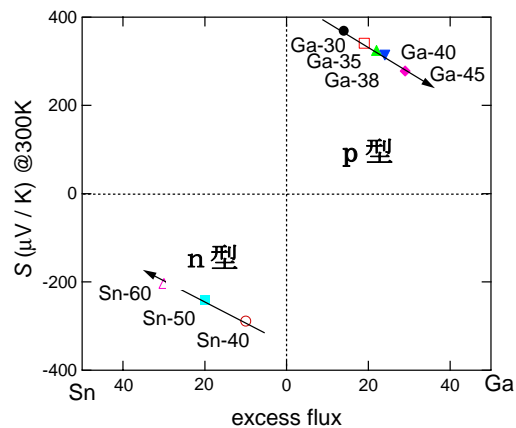


Fig. 2

[1] D. Huo et al., *Phys. Rev. B* **71**, 075113 (2005).

[2] M. A. Avila, et al., *Phys. Rev. B* **74**, 125109 (2006).