



Title	Thermoelectric Properties of Ternary Compounds Ag-M-Te <sub>2</sub> (M = Sb, Ga, and In)
Author(s)	艾克拜尔, 玉苏甫
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/59159">https://hdl.handle.net/11094/59159</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	艾 克 拜 尔 玉 苏 甫 (Aikebaier Yusufu)
博士の専攻分野の名称	博 士 (工学)
学 位 記 番 号	第 2 5 5 4 0 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 24 年 3 月 22 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科環境・エネルギー工学専攻
学 位 論 文 名	Thermoelectric Properties of Ternary Compounds Ag-M-Te <sub>2</sub> (M = Sb, Ga, and In) (三元系化合物 Ag-M-Te <sub>2</sub> (M = Sb, Ga 及び In) の熱電特性)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 山 中 伸 介 (副査) 教 授 下 田 吉 之 教 授 山 本 孝 夫 准教授 中 川 貴 准教授 黒 崎 健

## 論 文 内 容 の 要 旨

In this thesis, the thermoelectric (TE) properties of Ag-*M*-Te<sub>2</sub> (*M* = Sb, Ga, and In) were studied, with the purpose of improvement of the TE performance of existing materials as well as find new high performance TE materials.

In the first chapter, the basic science, engineering, theory, applications, and some of advanced TE materials were explained.

In the second chapter, the experimental methods were described. The sample preparation methods, electrical properties measurement methods, and the thermal properties measurement methods were explained in details.

In the third chapter, the author tried to improve the phase stability of the high performance TE material AgSbTe<sub>2</sub> by adding a small amount of another phase. Pb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>Te was chosen as the adding phase because the crystal structure and the lattice parameter were completely the same as those of AgSbTe<sub>2</sub>. The phase stability as well as the TE properties of the samples (Ag<sub>0.5</sub>Sb<sub>0.5</sub>Te)<sub>1-x</sub>(Pb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>Te)<sub>x</sub> (*x* = 0, 0.01, 0.02, 0.05, and 0.1) were investigated. The AgSbTe<sub>2</sub> phase was stabilized in the samples of *x* = 0.01 and 0.02. On the other hand, the samples of (Ag<sub>0.5</sub>Sb<sub>0.5</sub>Te)<sub>100-x</sub>(Pb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>Te)<sub>x</sub> (*x* = 75, 80, 85, and 90) were prepared and the TE properties were examined. Although all samples indicated single phase of the rhombohedral GeTe phase before hot-press, those were decomposed into the GeTe-based matrix phase and the PbTe-based precipitate after hot-press.

In the fourth chapter, the TE properties of chalcopyrite Ag<sub>1-x</sub>GaTe<sub>2</sub>, Ag<sub>1-x</sub>CuGaTe<sub>2</sub>, AgGa<sub>1-x</sub>CuTe<sub>2</sub>, and Ag<sub>1-x</sub>InTe<sub>2</sub> were described. Firstly, Ag<sub>1-x</sub>GaTe<sub>2</sub> (*x* = 0, 0.01, 0.03, 0.05, and 0.07) were investigated and confirmed that the reduction of Ag increased the carrier concentration of AgGaTe<sub>2</sub> as well as slightly decreased the thermal conductivity. The maximum *ZT* value was 0.77 at 850 K obtained in *x* = 0.05. Secondly, the effect of Cu doping into the Ag site on the TE properties of AgGaTe<sub>2</sub> was investigated. The Cu doping into the Ag site increased the carrier concentration of AgGaTe<sub>2</sub> led to enhancement of *ZT*. Thirdly, the effect of Cu doping into the Ga site on the TE properties of AgGaTe<sub>2</sub> was investigated. The Cu doping into the Ga

site in AgGaTe<sub>2</sub> also increased the carrier concentration of AgGaTe<sub>2</sub> led to enhancement of *ZT*. Finally, the effect of the Ag defect on the TE properties of AgInTe<sub>2</sub> was investigated. The reduction of Ag increased the carrier concentration of AgInTe<sub>2</sub> and decreased the thermal conductivity. As the results, the *ZT* of AgInTe<sub>2</sub> was slightly enhanced.

In the last chapter, the obtained results were summarized and suggestions for future works were proposed.

## 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、既存の熱電材料の性能向上及び新しい熱電材料の開発を目的として、三元系化合物Ag-*M*-Te<sub>2</sub> (*M* = Sb, Ga 及び In) の熱電特性を研究したものである。本論文は、以下の五章から構成されている。

第一章では、導入部として、熱電変換に関する基礎的な科学、理論、応用及び過去に研究されているAg-*M*-Te三元系化合物の熱電特性が述べられている。

第二章では、試料の作製方法、電気的特性の測定方法、熱的特性の測定方法等が詳しく説明されている。

第三章では、AgSbTe<sub>2</sub>の高温相を安定化させるために、結晶構造及び格子定数がAgSbTe<sub>2</sub>と同じとみなすことができるPb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>TeをAgSbTe<sub>2</sub>に添加した(Ag<sub>0.5</sub>Sb<sub>0.5</sub>Te)<sub>1-x</sub>(Pb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>Te)<sub>x</sub> (*x* = ~0.1) が作製され、その熱電特性及び相安定性が評価されている。少量のPb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>Te添加がAgSbTe<sub>2</sub>の安定化に有効であることが示されている。一方、(Ag<sub>0.5</sub>Sb<sub>0.5</sub>Te)<sub>100-x</sub>(Pb<sub>0.16</sub>Ge<sub>0.84</sub>Te)<sub>x</sub> (*x* = ~90) が作製され、その微細構造及び熱電特性が評価されている。すべての試料が比較的低い熱伝導率を示したことが述べられている。また、ホットプレス前は、GeTe相の単相構造であった試料が、ホットプレス後には、GeTe相とPbTe相に分解することが示されている。

第四章では、カルコパイライト構造を持つAg<sub>1-x</sub>GaTe<sub>2</sub> (*x* = ~0.05)、Ag<sub>1-x</sub>CuGaTe<sub>2</sub> (*x* = ~1)、AgGa<sub>1-x</sub>CuTe<sub>2</sub> (*x* = ~0.1) 及びAg<sub>1-x</sub>InTe<sub>2</sub> (*x* = ~0.05) が作製され、その熱電特性が評価されている。このうち、Ag<sub>1-x</sub>GaTe<sub>2</sub>及びAg<sub>1-x</sub>InTe<sub>2</sub>では、Agの化学両論比からのずれが、キャリア濃度を増加させると共に熱伝導率を低減させ、熱電特性を向上させることが示されている。Ag<sub>1-x</sub>CuGaTe<sub>2</sub>及びAgGa<sub>1-x</sub>CuTe<sub>2</sub>では、AgサイトあるいはGaサイトのCu置換がAgGaTe<sub>2</sub>のキャリア濃度を増加させ、熱電性能を向上させることが示されている。また、本研究において500~850 Kの中温領域において既存の熱電材料の性能を超える高性能材料の開発に成功したことが示されている。

第五章はまとめであり、本研究で得られた成果が要約されている。

以上のように、本論文は環境・エネルギー工学、特にエネルギーの有効利用技術としての熱電発電技術の開発に寄与するところが大い。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。