

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 28 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24246050

研究課題名(和文) 固体熱電変換デバイスによる欧州プロジェクト連携型自動車排熱発電システムの開発

研究課題名(英文) Development of thermoelectric waste-heat-recovery power-generation system adaptable to automotive applications

研究代表者

飯田 努 (IIDA, TSUTOMU)

東京理科大学・基礎工学部・教授

研究者番号：20297625

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 31,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、熱電発電方式により、自動車排熱発電を実現するための要素技術開発である。熱電発電材料には、環境低負荷な半導体材料マグネシウム・シリサイド環境半導体を用い、熱電材料の熱電的高耐久化および機械的高強度化、発電モジュールの高強度構造、微粉末原料による熱電的および機械的高性能化、ならびに材料特性向上に資する計算化学的手法による不純物添加の条件選定に関する基礎的な知見を得た。これらの成果は、自動車排熱向け排熱発電モジュールおよびシステムの開発および早期実用化につながるものである。

研究成果の概要(英文)：Thermoelectric (TE) generation is one of the attractive technologies technology because it can convert waste heat directly into electricity. Mg<sub>2</sub>Si has been recognized as a good environmentally benign TE material. Focusing on systems that are appropriate systems for automotive applications, TE power generation modules should have sufficient capabilities capability to work operate well even under conditions during operations. In order to realize a practical TE power generation module, better understanding of the thermoelectric and mechanical properties of the TE materials is essential to enable facilitate the structural design of TE power generators. Theoretical studies are important to achieve a thorough understanding of the electronic and carrier transport properties of Mg<sub>2</sub>Si to enable the design of high-performance Mg<sub>2</sub>Si-based materials. The results obtained within this project could provide well-defined understanding for above mentioned development issues.

研究分野：工学

キーワード：電気エネルギー工学

1. 研究開始当初の背景

我が国の一次エネルギー源に占める化石燃料(石油・石炭・天然ガス)比率は82% (2010年エネルギー白書)であり、温室効果を加速する化石燃料に強く依存したエネルギーシステムである。他方、化石燃料源からのエネルギーはその~70%以上が最終的に排熱として捨てられている。排熱を利用付加価値の高い電気エネルギーに変換し利用することによるCO<sub>2</sub>の削減が強く期待されている。排熱からの発電方式としては、マイクロガスタービン、スターリングエンジンと共に、現状では固体型熱電変換素子による排熱発電が主要技術の一つとして大きく注目されるようになってきている。特に欧州、米国では固体素子型熱電発電の大規模プロジェクトが相次いでスタートしている。

本研究開発は、固体素子型熱電発電方式による排熱再資源化に注目している。具体的には、熱電発電により、自動車および工業炉におけるオンサイト排熱発電を実現する、省エネルギーデバイスシステム技術開発である。熱電発電材料には、環境低負荷な熱電変換半導体材料マグネシウム・シリサイド環境半導体(以下、Mg<sub>2</sub>Siとして示す)により500~900 Kの排熱を直接電気エネルギーに変換することでCO<sub>2</sub>排出抑制を実現する「自動車排熱向け排熱発電モジュールおよびシステムの開発」をターゲットとしている。

2. 研究の目的

本研究では、Mg<sub>2</sub>Siにより500~900 Kの排熱を直接電気エネルギーに変換することでCO<sub>2</sub>排出抑制を実現する「排熱発電モジュールおよびデバイスの開発」を主目的とし、欧州のプロジェクトと連携し、Mg<sub>2</sub>Siについては周辺エレクトロニクスを含めた、実用化モジュール製作へ向けた要素技術の確立をめざし、以下に示す項目について取り組む。

- (1). 新モジュール構造(ユニレグ型)の低熱損失化、高耐久化、高強度構造化
- (2). Mg<sub>2</sub>Si ナノ原料開発による高性能化
- (3). 計算科学手法によるMg<sub>2</sub>Siのn形不純物ドーピング特性

3. 研究の方法

本研究の具体的な研究内容は以下に示す3項目から構成される。

- (1). 新モジュール構造(ユニレグ型)の低熱損失化、高耐久化、高強度構造化
  - (1-1) 低熱損失: 熱源からの熱フローを最小限のロスで発電素子へ導くユニレグモジュール構造の検討
  - (1-2) 高耐久化: 単発電素子の経時劣化を抑制する不純物の探索と添加特性の調査
  - (1-3) 高強度構造化: モジュール強度および実装デバイス機械的特性の向上と発電素子の加工条件と素子の機械的強度の向上
- (2). Mg<sub>2</sub>Si ナノ原料開発による高性能化
  - (2-1) Sb+Zn 添加 Mg<sub>2</sub>Si のナノパウダー作製プロセス開発
  - (2-2) ナノ Mg<sub>2</sub>Si パウダーによる機械特性値を向上させる要素特性の抽出
- (3). 計算科学手法によるMg<sub>2</sub>Siのn形不純物ドーピング特性

4. 研究成果

- (1). 新モジュール構造(ユニレグ型)の低熱損失化、高耐久化、高強度構造化
  - (1-1) 低熱損失: 熱源からの熱フローを最小限のロスで発電素子へ導くユニレグモジュール構造の検討

従来有効な接合方法が示されていないかった発電モジュールと熱源の間について、耐熱性、絶縁性、間隙充填容易性、高熱伝導性の観点から熱源と熱

電発電モジュールの高温側熱接合面に窒化ホウ素(BN)ペーストを用い、熱電発電モジュールとヒートシンクとの低温側熱接合面にトーヨーケム社製TSU700H 高熱伝導度ポリウレタンシートを配したユニレグモジュール構造を基礎構造として設定し、各種伝熱特性、熱電発電特性のモデリングを有限要素法「ANSYS」によって行った。動作想定温度 600° Cでの発電素子形状(断面積、高さ)および熱流の関係、ユニレグ構造における発電素子間金属配線の断面形状が発電出力に与える影響を調査し、現在使用している Mg<sub>2</sub>Si 原料特性に対する素子形状と出力の関係を明らかにした。結果として、5x5x7.5 mm<sup>3</sup>の発電素子を1 mm厚のCu平板配線で構成したユニレグ構造が有効であることが示唆された。また、実モジュール構造の基本構造として、(1-2)項に述べるn形Mg<sub>2</sub>Si原料による2~4本のMg<sub>2</sub>Si熱電発電素子を用いたユニレグ構造発電モジュールを作製した。このモジュールにより高温側600°C及び低温側100°Cにおける発電電力密度は0.75 W/cm<sup>2</sup>を得た。(図1)

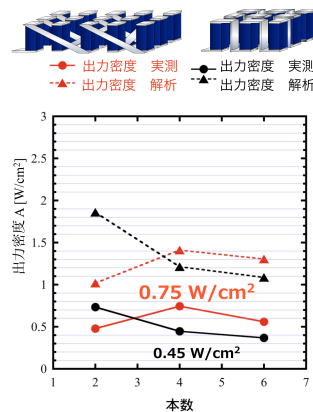


図1 新モジュール構造による発電電力密度

873 K 大気雰囲気下における500時間までの耐久試験において、これまで低接触抵抗かつ良好なMg<sub>2</sub>Si-Ni電極界面が得られることから用いられてきた一体電極焼結法 Ni電極には界面劣化に起因するNi-Si層が形成されることが知られるようになり、事実上、実用化には継続使用ができないという知見に至った。これは高温での電極作製プロセスが起因であることが知られたため、低温での新たな発電素子向け電極形成法として、大口径試料の作製や、均一な素子の作製が可能になると見込まれるペースト状Ni電極材を導入し、プロセス最適化により電極と母材間の接触抵抗率を得た。プロセスの簡便性、量産性、出力、耐久性に優れた実用化手法の目処が立った。

- (1-2) 高耐久化: 単発電素子の経時劣化を抑制する不純物の探索と添加特性の調査

本研究室における従前の高性能n形不純物Sbを基礎とし、他不純物であるAl、Znを同時添加(Sb+Zn、Sb+Al、Sb+Al+Zn)し、熱電気的特性・高温耐久性向上を狙った。Sb+Zn添加では従前のSbを単独で添加していた試料より熱伝導率を改善し(図2)、無次元性能指数ZT値0.98を安定して得られるようになった(図3)。また、Sb+Zn添加の試料においては、873 Kの大気中試料環境において1000時間超安定な試料抵抗値に加え、大気中873 Kと373 Kの温度差環境において安定な出力が得られ高温耐久性が示された。こうしたことから今後Sb+Znを主原料として使用することとした。Sb+Znを同時添加したMg<sub>2</sub>Siに関するSb及びZnの添加量の最適化および熱電特性向上にかかるプロセス開発については、本研究における成果をもとに、より詳しく調査検討する必要があるため他プロジェクトに移管して継続的に

取り組むこととした。Sb+Znの添加最適条件については、他プロジェクトでの成果を参照し、随時、本研究に連動して試料作成条件を検討した。本研究では主として、Sb+Znを同時添加したMg<sub>2</sub>Siの動作熱環境における高耐久特性の向上に資する取り組みと高耐久化に伴う基礎熱電特性の劣化低減に注力した。

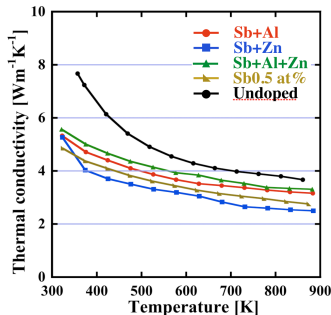


図2 Sb+Zn, Sb+Al, Sb+Al+Znを添加したMg<sub>2</sub>Siの熱伝導率

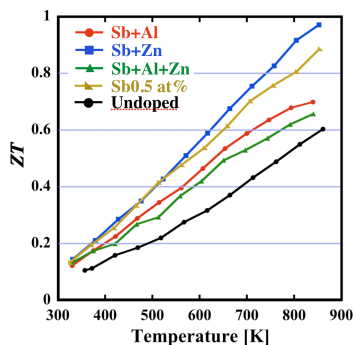


図3 Sb+Zn, Sb+Al, Sb+Al+Znを添加したMg<sub>2</sub>SiのZT値

ANSYSによりMg<sub>2</sub>Si発電素子およびユニレグ構造の熱-電流連成解析を行い、作製したMg<sub>2</sub>Si発電素子の発電特性予測と実測定値との比較を行った。基本熱電特性および生産性に優れたMg<sub>2</sub>Si母素材としてSb 0.5at%+Zn 0.5 at%を同時添加したMg<sub>2</sub>Siについて調査を行った。Sb+Znの同時添加Mg<sub>2</sub>Si試料の373 K~873 Kでのゼーベック係数、電気伝導率、熱伝導率の実測値から、素子寸法高5~10 mmと、断面積3×3~5×5 mm<sup>2</sup>の発電素子についてANSYS解析を行ったところ、873 Kと373 Kの想定動作温度差間で、5x5x5 mm<sup>3</sup>の素子において最大出力805 mWを得た。また、発電素子における実測値は740 mWを得た。

Sb 0.5at%+Zn 1.0at%添加試料に関しては、本研究における原料調整、粉末化プロセス、量産を志向した簡便な焼放電焼結プロセスにより、大気中873 Kにおいて1000時間にわたり安定な素子抵抗値及びヤング率が得られ、高温耐久性を担保する基礎条件が見出された。Mg<sub>2</sub>SiにおけるSb 0.5at%+Zn 1.0at%添加試料で得られる試料の熱電特性は、最大ZT値が873 Kのとき0.96であり、大きな熱電特性の劣化は見られず、実用上十分に高い値を得た。これらの観点から、Sb+Zn添加は実用中温度域での高耐久性の面でモジュール作製に供することができる素子としての結果を得た。

### (1-3) 高強度構造化: モジュール強度および実装デバイス機械的特性の向上と発電素子の加工条件と素子の機械的強度の向上

Sbを0.5 at%添加したMg<sub>2</sub>Si多結晶から焼結

体を作製する際に、金属バインダー(Ni, Cu, Al, Zn)を導入して試料作製し機械的特性を測定した。超音波試験法、ナノインデンテーション法、4点曲げ試験法を実施し、Mg<sub>2</sub>Siに関する破壊靭性値(~1.5 MPa√m)、ヤング率(~140 GPa:インデンテーション、~110 GPa:超音波)、曲げ強度(~60 MPa)、硬さ(~700)を得た。試験結果より、バインダーを入れることで、バインダー無しの試料と同等、あるいはそれ以上の機械的特性を示すことがわかった。この結果をベース特性の一部とし、Mg<sub>2</sub>Si発電素子の機械的特性、および熱電特性値を用いた有限要素計算結果から、(1-1)に示す自動車用途の耐振動性を考慮した新構造発電モジュールを設計、シミュレーション評価し、従前のモジュール構造が有していた構造的弱点の克服に寄与するMg<sub>2</sub>Si排熱発電モジュールの試作を行った。

## (2). Mg<sub>2</sub>Si ナノ原料開発による高性能化

### (2-1) Sb+Zn 添加Mg<sub>2</sub>Siのナノパウダー作製プロセス開発

Sb+Znを添加したMg<sub>2</sub>Siについて、ナノ原料開発による高性能化 高エネルギー・ボールミルにより~100 nmの微粒子化プロセス開発に成功した。これまでSbを添加したMg<sub>2</sub>Siについては別プロジェクトにおいて開発・実施されていたが、本研究で主として用いているSb+Zn添加原料では微粒子化に伴い同時添加用に導入されているZnの酸化劣化が顕在化しており、作製ができていなかった。~100 nmの微粒子焼結では、本研究で実施した放電焼結方形波パルス電流のチューニングによる電流印加が試料組織の緻密化に有効であることを見いだした。ナノ化原料による焼結体の熱伝導率は非ナノ粒径の試料より大きな熱伝導率を示した。これは粒界に沿った酸化物 MgOの存在が高い熱伝導率を示した原因ではないかという関連性に関する知見が得られた。熱伝導率の悪化に関しては、MgOの熱伝導率は室温で、59 Wm<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup>とMg<sub>2</sub>Siの10倍程度の熱伝導率であることから、MgOが多く存在していることが、粒子径が細かい試料で高い熱伝導率を示したと考えられる。出力因子に関しても、粒界にMgOが粒界に存在することによる電気伝導率低下で結果的に低下したと考えられる。熱伝導率が悪化することで、ナノ粒子化による熱電発電特性を直接的に向上させることは実現できなかった。

### (2-2) ナノMg<sub>2</sub>Siパウダーによる熱電特性及び機械特性値を向上させる要素特性の抽出

機械的特性に関して、平均粒径 20~0.2 μmのSb+Zn 添加 Mg<sub>2</sub>Si 原料粉末を放電焼結した試料のヤング率、破壊靭性値(図4)、曲げ強度(図5)を測定し、粒子微細化によって、緻密化が容易になりヤング率の上昇みられた。

Mg<sub>2</sub>Siの機械的特性を明らかにする事ができた。また粒径を制御し、微細化する事により強度の改善が確認できた。機械的特性の観点からは、平均粒径6.0~0.7 μmが最適な粒子の大きさだと考えられる。また、この程度のサイズの粒径制御は、熱電発電素子作製面で十分に実用化可能なプロセスだと考えられる。また各平均粒径における熱電特性を調査し、粒径を微細化させる事で熱電電気的特性は低下する事が示唆された。平均粒径0.2 μmでは873KにおいてZT値0.45と基礎原料値の0.98から大きく低下したが、平均粒径6.0 μmでは1.0の値を示した。これらは微細化によりMgOの生成が熱伝導率を悪化させることに起因していると考えられる。機械的特性と熱電電気的特性の両方を考慮すると、平均粒径6.0 μmが最適な粒径だと考えられる。(図6)

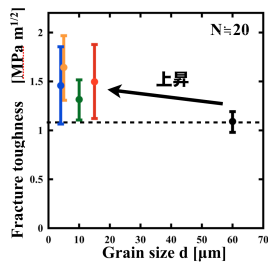


図4 粒径制御による破壊靱性値

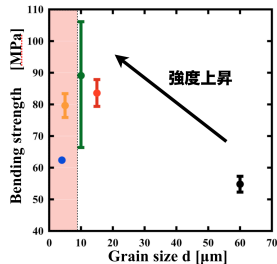


図5 粒径制御による曲げ強度

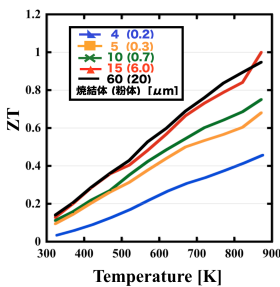


図6 粒径制御によるZT値

### (3). 計算科学手法によるMg<sub>2</sub>Siのn形不純物ドーピング特性

第一原理計算を用いて、Mg<sub>2</sub>Siへの不純物ドーピング効果を理論的に解析し、最適な不純物添加濃度を予測した。計算には、擬ポテンシャル法に基づくQuantum Espressoと、全電子計算であるFLAPW法を用いたABCAPの2種の計算コードを用いた。本年度は、Mg<sub>2</sub>Siの典型的なn形不純物であるAlとSbに着目し、構造特性(不純物サイトと格子定数)を、Quantum Espressoを用いてsuper cell計算により解析した。次に、得られた構造に基づき、ABCAPを用いて全電子計算を行い、不純物ドーピング系の電子状態と輸送特性を求めた。本理論はSb添加系のSeebeck係数の実験結果を定量的に再現し、さらにSbおよびAlの最適な添加濃度の理論予測が得られた。

Mg<sub>2</sub>Siのn形および等電子不純物ドーピング特性: Mg<sub>2</sub>Siの電子物性と熱電特性に対する不純物添加効果を明らかにし、性能向上に向けた材料設計の指針を得るため、第一原理計算による理論解析を行った。本年度は新しいn形不純物の探索や、等電子不純物を添加した系の物性評価、さらに格子欠陥が及ぼす影響について調査を行った。96原子からなるスーパーセルで、擬ポテンシャル法による格子緩和計算を行った。形成エネルギーから、ZnとCが各々Mg、Siサイトに置換され等電子不純物として働き、SとSeが安定なn形不純物となる結果となった。また、格子欠陥解析では、Mg空孔と格子間侵入が電子濃度や構造安定性に影響する結果となった。

不純物添加Mg<sub>2</sub>Siの性能向上に向けた材料設計の指針を得るため、第一原理計算による理論解析を行った。初年度~次年度では、Mg<sub>2</sub>Siの代表的

なn形不純物であるSbとAlについて、構造特性とゼーベック係数の濃度依存性を明らかにし、実験結果を定量的に再現した。それ以降の期間では、高性能Mg<sub>2</sub>Si系材料の開発に向けた不純物原子の探索に着手し、理論および計算科学的な立場から、新しいp形不純物を提案した。

本研究では、不純物添加系の電子状態を求めるため、擬ポテンシャル法に基づく計算コードQuantum Espressoを用いて第一原理計算を行った。Mg<sub>2</sub>Siは空間群Fm-3mに属する閃亜鉛鉱構造を持つ。本研究では、不純物原子が占める位置として、MgおよびSi置換とセルの中心(4bサイト)への格子間侵入に着目した。また、実験で用いられる不純物濃度(~1 at.%)を数値計算で再現するため、96原子(Mg原子64個、Si原子32個)からなるスーパーセルを用いた。不純物添加系の電子状態を知るには、まずエネルギー的に安定な結晶構造(格子定数、原子の相対的な位置)を求める必要がある。そのため、計算の第一段階では、原子間に働く力から結晶内の原子の安定位置を決定する、格子緩和計算を行った。尚、計算条件としては、GGA(一般化密度勾配近似)汎関数によるノルム保存型擬ポテンシャルを用いている。さらに、得られた安定構造に基づき、系の全エネルギーから形成エネルギーを評価した。得られた結果は、KKR-CPA法、FLAPW全電子計算法による計算結果、さらに実験の傾向とも一致したことから、計算手法の妥当性が示された。また、SbはSi置換により負の形成エネルギーを示し、極めて安定なn形不純物であることを示す結果が得られた。一方で、Alはn形になるMgサイトにおいて最小の形成エネルギーを示すものの、常に正の値をとった。実験研究から、Sb添加によりキャリア密度が増加し、Sbはn形不純物として働くことが知られる。一方で、Al添加はほとんど電気的特性に寄与しない。上述の形成エネルギーの計算結果は、このような実験事実と一致する。

次に、全電子計算法に基づく計算コードABCAPを用いて、Sb添加系の熱電特性を評価した。ここで、Sbは全てSiサイトに置換し、価数の違いから1個ずつ電子を放出すると仮定して、電子状態をrigid band近似により取り扱った。Sb 0.5 at.%添加系の電子状態に対し、ボルツマン方程式を適用して求めたゼーベック係数(図7-a)を、同濃度の実験結果と比較すると計算結果は実験を定量的に再現していることが明らかとなった。また、Sb濃度を変えた計算からは、最大のゼーベック係数が得られる濃度は0.15 at.%であると予測された。(図7-b)

本研究におけるもう一つの取り組みとして、上述の計算手法を応用し、安定なp形Mg<sub>2</sub>Siの探索を行った。従来、Mg<sub>2</sub>Siの性能向上にはn形不純物が主に用いられてきた。一方で、p形不純物を添加した系は、熱電性能と高温安定性の点でn形Mg<sub>2</sub>Siに劣るという問題がある。もし、安定かつ高出力なp形Mg<sub>2</sub>Siを作製できれば、従来のn形不純物添加Mg<sub>2</sub>Siと組み合わせてII型熱電発電モ

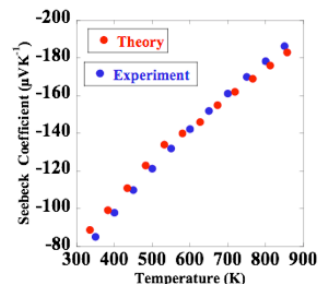


図7-(a) Sb添加系におけるゼーベック係数の温度依存性:0.5 at.%添加系の計算と実験の比較

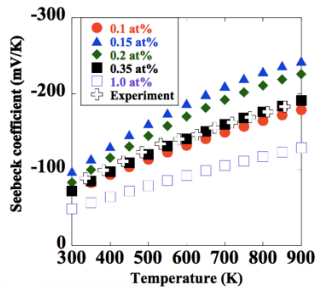


図7-(b) Sb添加系におけるゼーベック係数の温度依存性: Sb添加濃度依存性

ジュールを構成する熱電ジュールが実現できると考えられる。

*p*形伝導性を調査した各不純物の形成エネルギーを図7に示す。第I群(Li, Ag, Na, K)は1価原子であり、Mg置換により正孔を放出する。同様に、第II群(B, Ga)はSi置換で*p*形不純物となる。また、第III群の原子(S, Se, F, Cl)は電気陰性度が高いことから、格子間侵入により周囲の電子を引きつけ正孔を生成すると期待される。不純物サイトが系の電子物性やキャリア伝導性に影響する例に、Li, F添加系の状態密度を調べた。

図7の不純物のうちSとSe以外は、*p*形サイト(第I群:Mg置換、第II群:Si置換、第III群:4b侵入)において最も低い形成エネルギーを持つ。代表的な*p*形不純物であるAgの形成エネルギー(0~0.1 eV)を基準にとり、それよりも小さい形成エネルギーで*p*形サイトに入る不純物をまとめると、Na, Ga, Clとなった。しかし、これらは2つ以上のサイトで低い形成エネルギーを持つため、熱のある環境下では*p*形サイトのみに留まらないことが懸念される。すなわち、不純物が複数のサイトを占め、電子と正孔が同時に生成される可能性が示唆される。実験で見られた*p*形Mg<sub>2</sub>Siの熱的不安定性<sup>(5)</sup>は、その影響によるものだと考えられる。一方、SとSeは、Si置換で負の形成エネルギーを示し、伝導帯内に不純物準位が形成されたことから、SとSeは*p*形不純物ではなく、*n*形不純物として働くことと予想される。

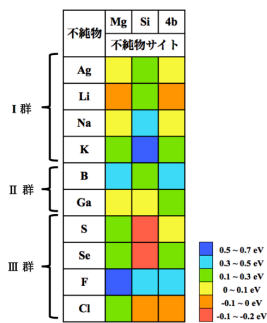


図7 *p*形不純物探索における種々の不純物の形成エネルギー

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計13件)

- (1) J. Zhao, Z. Liu, J. Reid, K. Takarabe, T. Iida, B. Wang, Y. Uwatoko and J. S. Tse, Thermoelectric and electrical transport properties of Mg<sub>2</sub>Si multi-doped with Sb, Al and Zn, JOURNAL OF MATERIALS CHEMISTRY A, 査読有, 3巻, 1974-1978, 2015, 国際共著, DOI: 10.1039/c5ta03751d
- (2) M. Ishikawa, T. Nakamura, S. Hirata, T. Iida, K. Nishio, and Y. Kogo, Mechanical properties of Mg<sub>2</sub>Si with metallic

binders, JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 54巻, 07JC031-07JC037, 2015, 国際共著, DOI: 10.7567/JJAP.54.07JC03

(3) N. Hirayama, T. Iida, S. Morioka, M. Sakamoto, K. Nishio, Y. Kogo, Y. Takanashi, N. Hamada, Theoretical analysis of structure and formation energy of impurity-doped Mg<sub>2</sub>Si: Comparison of first-principles codes for material properties, JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 54巻, 07JC051-07JC056, 2015, 国際共著, DOI: 10.7567/JJAP.54.07JC05

(4) N. Hirayama, T. Iida, H. Funashima, S. Morioka, M. Sakamoto, K. Nishio, Y. Kogo, Y. Takanashi, N. Hamada, First-Principles Study on Structural and Thermoelectric Properties of Al- and Sb-Doped Mg<sub>2</sub>Si, Journal of Electronic Materials, 査読有, 44巻, 1656-1662, 2015, DOI: 10.1007/s11664-014-3508-4

(5) N. Hirayama, T. Iida, S. Morioka, M. Sakamoto, K. Nishio, Y. Kogo, Y. Takanashi, and N. Hamada, First-principles investigation of structural, electronic, and thermoelectric properties of *n*- and *p*-type Mg<sub>2</sub>Si, Journal of Materials Research, 査読有, 39巻, 2564-2577, 2015, DOI: 10.1557/jmr.2015.206

(6) T. Sakamoto, T. Iida, K. Sekiguchi, Y. Taguchi, N. Hirayama, K. Nishio and Y. Takanashi, Selection and Evaluation of Thermal Interface Materials for Reduction of the Thermal Contact Resistance of Mg<sub>2</sub>Si Thermoelectric Generators, Journal of Electronic Materials, 査読有, 43巻, 3792-3800, 2014, DOI: 10.1039/c5ta03751d

(7) T. Sakamoto, T. Iida, Y. Ohno, M. Ishikawa, Y. Kogo, N. Hirayama, K. Arai, T. Nakamura, K. Nishio and Y. Takanashi, Stress Analysis and Output Power Measurement of an *n*-Mg<sub>2</sub>Si Thermoelectric Power Generator with an Unconventional Structure, Journal of Electronic Materials, 査読有, 43巻, 1620-1629, 2014, DOI: 10.1007/s11664-014-3165-7

(8) T. Sakamoto, T. Iida, Y. Ohno, M. Ishikawa, Y. Kogo, N. Hirayama, K. Arai, T. Nakamura, K. Nishio and Y. Takanashi, Stress Analysis and Output Power Measurement of an *n*-Mg<sub>2</sub>Si Thermoelectric Power Generator with an Unconventional Structure, Journal of Electronic Materials, 査読有, 2014, DOI: 10.1007/s11664-013-2814-6

(9) Y. Oto, T. Iida, T. Sakamoto, R. Miyahara, A. Natsui, K. Nishio, Y. Kogo, N. Hirayama, and Y. Takanashi, Thermoelectric properties and durability at elevated temperatures of impurity doped *n*-type Mg<sub>2</sub>Si, Phys. Status Solidi C, 査読有, 12巻, 1857-1861, 2013, DOI: 10.1002/pssc.201300353

(10) Y. Hayatsu, T. Iida, T. Sakamoto, S. Kurosaki, K. Nishio, Y. Kogo, and Y. Takanashi, Fabrication of Large Sintered Pellets of Sb-doped *n*-type Mg<sub>2</sub>Si Using a Plasma Activated Sintering Method, Journal of Solid State Chemistry, 査読有, 193巻, 161-165, 2012, DOI: 10.1016/j.jssc.2012.07.008

(11) T. Sakamoto, T. Iida, Y. Taguchi, S. Kurosaki, Y. Hayatsu, K. Nishio, Y. Kogo, and Y. Takanashi, Examination of a thermally viable structure for an unconventional uni-leg Mg<sub>2</sub>Si thermoelectric power generator, Journal of Electronic Materials, 査読有, 41巻, 1429-1435, 2012, DOI: 10.1007/s11664-012-1974-0

(12) T. Sakamoto, T. Iida, Y. Honda, M. Tada, T. Sekiguchi, K. Nishio, Y. Kogo, and Y. Takanashi, The use of transition metal silicides to reduce the contact resistance between the electrode and sintered *n*-type Mg<sub>2</sub>Si, Journal of Electronic Materials, 査読有, 41巻, 1805-1810, 2012, DOI: 10.1007/s11664-012-2073-y

(13) T. Nemoto, T. Iida, J. Sato, T. Sakamoto, T. Nakajima and Y. Takanashi, Power generation characteristics of Mg<sub>2</sub>Si uni-leg thermoelectric generator, Journal of Electronic Materials, 査読有, 41巻, 1312-1316, 2012, DOI: 10.1007/s11664-012-1963-3

[学会発表] (計18件)

(1) Y. Kogo, T. Nakamura, S. Hirata, T. Kameyama, T. Iida, Enhancement of Strength and Toughness of TE Materials for Realizing Reliable TE Modules, 34TH ANNUAL INTERNATIONAL CONFERENCE ON THERMOELECTRICS(国際学会), 2015年06月28日~2015年07月02日, DRESDEN, GERMANY

(2) T. Iida, N. Hirayama, Y. Kogo, A. Yasumori, K. Nishio, Thermoelectric and Mechanical Properties of N-type Mg<sub>2</sub>Si for Waste-heat- recovery Power Generator, 14th International Union of Materials Research Societies- International Conference on Advanced Materials(招待講演)(国際学会), 2015年10月25日~2015年10月29日, JEJU, KOREA

(3) N. Ishida, T. Iida, Y. Nagatsuka, H. Kunioka, N. Hirayama, A. Yasumori, Y. Kogo, and K. Nishio, Possible Electrode Formation Processes for n-Type Mg<sub>2</sub>Si, MATERIALS RESEARCH SOCIETY, Fall Meeting 2015(国際学会), 2015年11月29日~2015年12月04日, Boston, USA

(4) T. Iida, Y. Kogo, A. Yasumori, K. Nishio, T. Nemoto, H. Suda, Y. Taguchi, B. Roland, M. Inada, Current status of Mg<sub>2</sub>Si for realizing a practical thermal-to-electric power generation device, 4th IAV THERMOELECTRICS CONFERENCE, Utilizing Waste Heat in Transport and Industry(招待講演), 2014年12月10日~2014年12月12日, Berlin, Germany

(5) T. Iida, A. Shimodate, N. Ishida, N. Hirayama, A. Yasumori, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Thermal stability at the interface between n-type Mg<sub>2</sub>Si and the electrode and passivation layers., 12th EUROPEAN CONFERENCE ON THERMOELECTRONICS, 2014年09月24日~2014年09月26日, Madrid, Spain

(6) N. Hirayama, T. Iida, H. Funashima, S. Morioka, M. Sakamoto, K. Nishio, Y. Kogo, Y. Takanashi, and N. Hamada, First-principles study on Seebeck and Hall Effects in Impurity-doped Mg<sub>2</sub>Si, 12th EUROPEAN CONFERENCE ON THERMOELECTRONICS, 2014年09月24日~2014年09月26日, Madrid, Spain

(7) T. Iida, T. Sakamoto, Y. Taguchi, N. Hirayama, M. Ishikawa, T. Nemoto, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Thermoelectric and mechanical properties of n-type Mg<sub>2</sub>Si to realize practical thermal-to-electric power generation device, THE 5th INTERNATIONAL CONGRESS ON CERAMICS(招待講演), 2014年08月17日~2014年08月21日, Beijing, China

(8) T. Nakamura, Y. Kogo, T. Iida, T. Sakamoto, N. Hirayama, M. Ishikawa, K. Nishio, and Y. Takanashi, Comparison between finite element method calculations and measured data in terms of the output power of an Mg<sub>2</sub>Si thermoelectric chip and a unileg couple, IEEE 33rd INTERNATIONAL CONFERENCE ON THERMOELECTRONICS, 2014年07月06日~2014年07月11日, Nashville, USA

(9) A. Shimodate, T. Iida, Y. Oto, N. Hirayama, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Thermoelectric behavior of n-type Mg<sub>2</sub>Si concurrently doped with antimony and zinc, IEEE 33rd INTERNATIONAL CONFERENCE ON THERMOELECTRONICS, 2014年07月06日~2014年07月11日, Nashville, USA

(10) T. Iida, Y. Oto, S. Soeda, S. Hirata, M. Ishikawa, T. Sakamoto, K. Nishio, Y. Kogo, Y. Taguchi, T. Nemoto, N. Hirayama, and Y. Takanashi, Thermoelectric and mechanical properties of n-type Mg<sub>2</sub>Si and updated unileg thermoelectric power generator, INTERNATIONAL UNION OF MATERIALS RESEARCH SOCIETIES, International Conference on Electronic Materials(招待講演), 2014年06月10日~2014年06月14日, Taipei, Taiwan

(11) T. Iida, T. Sakamoto, Y. Taguchi, N. Hirayama, M. Ishikawa, T. Nemoto, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Waste heat recovery using environmentally benign Mg<sub>2</sub>Si for reducing automotive CO<sub>2</sub> emission, INTERNATIONAL UNION OF MATERIALS RESEARCH SOCIETIES, International Conference on Asia (ICA 2013)(招待講演), 2013年12月16日~2013年12月20日, Bangalore, India

(12) T. Iida, Y. Oto, S. Soeda, S. Hirata, M. Ishikawa, T. Sakamoto, Y. Kogo, K. Nishio, Y. Taguchi, A. Node, N.

Hirayama, and Y. Takanashi, Thermoelectric and mechanical properties of n-type Mg<sub>2</sub>Si prepared with manufacturing-directed processes and durability characteristics, MATERIALS RESEARCH SOCIETY, 2013 Fall Meeting(招待講演), 2013年12月01日~2013年12月06日, Boston, USA

(13) S. Hirata, T. Iida, Y. Oto, M. Ishikawa, Y. Taguchi, A. Node, T. Sakamoto, Y. Kogo, K. Nishio, N. Hirayama, and Y. Takanashi, Variation in the mechanical properties of impurity-incorporated Mg<sub>2</sub>Si prepared by the plasma sintering method, MATERIALS RESEARCH SOCIETY, 2013 Fall Meeting, 2013年12月01日~2013年12月06日, Boston, USA

(14) T. Iida, T. Sakamoto, Y. Taguchi, N. Hirayama, M. Ishikawa, T. Nemoto, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Current status of Mg<sub>2</sub>Si to realize practical thermal-to-electric power generation device, 11th EUROPEAN CONFERENCE ON THERMOELECTRONICS(招待講演), 2013年11月18日~2013年11月21日, ESA/ESTEC, Noordwijk, Netherlands

(15) Y. Kogo, M. Ishikawa, T. Nakamura, T. Iida, K. Nishio, and N. Hirayama, Mechanical properties of Mg<sub>2</sub>Si and effect of Ni addition, THE MINERALS, METALS & MATERIALS SOCIETIE (TMS), Materials Science & Technology 2013 (MS&T 2013), 2013年10月27日~2013年10月30日, Montreal, Canada

(16) T. Iida, T. Sakamoto, K. Nishio, Y. Kogo, N. Hirayama, and Y. Takanashi, Direct thermal-to-electric energy conversion using environmentally benign Mg<sub>2</sub>Si for reducing automotive CO<sub>2</sub> emission, ASIA-PACIFIC CONFERENCE ON SEMICONDUCTING SILICIDES 2013(招待講演), 2013年07月27日~2013年07月29日, Tsukuba, Japan

(17) T. Iida, T. Sakamoto, N. Hirayama, M. Ishikawa, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Improvement of thermoelectric properties of doped n-type Mg<sub>2</sub>Si and component technology to realize a unileg thermoelectric generator, IEEE 32nd INTERNATIONAL CONFERENCE ON THERMOELECTRONICS(招待講演), 2013年06月30日~2013年07月04日, Kobe, Japan

(18) R. Miyahara, T. Iida, Y. Oto, T. Sakamoto, N. Hirayama, Y. Kogo, K. Nishio, and Y. Takanashi, Influence of impurity co-doping on the thermoelectric properties of Mg<sub>2</sub>Si, MATERIALS RESEARCH SOCIETY, 2012年11月26日~2012年11月30日, Boston, USA

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

○取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

東京理科大学 飯田研究室ホームページ

<http://www.tus-iidalab.net>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

飯田 努 (IIDA, Tsutomu)

東京理科大学・基礎工学部・教授

研究者番号：20297625

(2)研究分担者

該当ありません

(3)連携研究者

向後 保雄 (KOGO, Yasuo)

東京理科大学・基礎工学部・教授

研究者番号：60249935

平山 尚美 (HIRAYAMA, Naomi)

東京理科大学・基礎工学部・嘱託助教

研究者番号：70581750