29a-PB4-2

La-Nb 共添加 $SrTiO_3$ セラミックスにおける熱電特性

Thermoelectric Property on $SrTiO_3$ Ceramics Modified with La and Nb

岡山大　○寺西 貴志，石川 裕介，林 秀考，岸本 昭

Okayama Univ., °Takashi Teranishi, Yusuke Ishikawa, Hidetaka Hayashi, Akira Kishimoto

E-mail: terani-t@cc.okayama-u.ac.jp

ドナー添加により n 型半導体化したチタン酸ストロンチウム($SrTiO_3$, ST)は，その高い出力因子から酸化物熱電材料の代表的なベンチマークとして挙げられる．熱電変換効率は主として無次元性能指数 *ZT* 値($=S^2\sigma T/\kappa$)で与えられ，例えば A サイトに対して 10mol%La 置換した $La_{0.1}Sr_{0.9}TiO_3$ は 660 K において *ZT*~0.16 が達成されている[1]．また Nb などの B サイトに対するドナーも有効であることが知られており, 20mol%Nb 添加した ST において 1000K で *ZT*~0.35 といった値も報告されている[2]. 本研究では ST に La および Nb を共添加した $La_xSr_{1-x}Nb_yTi_{1-y}O_3$ セラミックス(LSNT)を作製するとともに，還元焼成条件を検討することで熱電性能のさらなる改善を図ることを目的とした．

LSNT セラミックスは汎用の固相法により合成した．秤量した混合粉末を Ar 中 1360℃6h 保持で仮焼し CIP 成形を行った．焼成は 1) Ar flow 中 (1L/min)，2) Ar 雰囲気 + 熱間静水圧加圧(HIP)処理中，3) Ar flow (1L/min) + グラファイトカーボンフェルト(Nippon carbon)で試料を覆う，の 3 つの還元条件を検討した．焼成温度は 1550~1600℃4h 保持とした．導電率σ，ゼーベック係数 *S* は Ar 雰囲気中で測定した. 格子熱伝導率はレーザーフラッシュ法により熱拡散率を測定することで算出し，電子熱伝導率は Wiedemann-Franz 則により求め，両者の和を熱伝導率κとした．得られたパラメータより最終的に *ZT* を決定した．また，異なる還元焼成条件における Ti の価数状態を調べるため，X 線吸収微細構造解析(XAFS)を K 吸収端近傍で行った．XAFS 測定は立命館大学 SR センターBL-3 を用いて行われた．

上記還元条件 1)～3)のうち，カーボンフェルトを使用した条件 3)において高い導電率が得られ，10mol%La のみ添加した ST (10/0-LSNT)において室温付近で$\sigma>10^5$ S/m を示した．この条件で作製した LSNT セラミックスにおける *ZT* 値の温度依存性を Fig. 1 に示す．結果，La および Nb を 5mol%共添加した試料 $La_{0.05}Sr_{0.95}Nb_{0.05}Ti_{0.95}O_3$ (5/5-LSNT)において，473K で最大値 *ZT*~0.16 を示した．この値はベンチマークである 10/0-LSNT に比べ, 等温比較でおよそ 1.5 倍改善されたものである．LSNT における各熱伝性能(σ, *S*, κ)ならびに Ti の価数状態についての詳細な結果・考察については当日報告する．

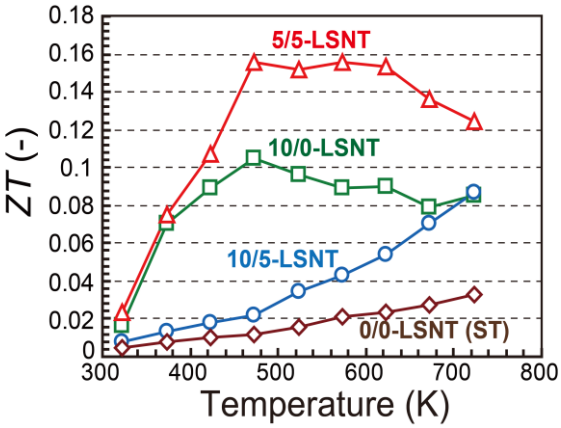

Fig.1　Variations of *ZT* with temperature of La/Nb-LSNT ceramics.

[1]H. Muta, K. Kurosaki, and S. Yamanaka, *J. Alloys Compd.*, **350**, 292-295 (2003).
[2]S. Ohta, H. Ohta, and K. Koumoto, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **114**, 102-105 (2006).

© 2013 年　応用物理学会