

強相関系酸化物 Li_2RuO_3 の相制御による熱電特性の向上Thermoelectric properties of the strongly correlated oxide Li_2RuO_3 ○ 寺崎一郎¹、安部修平¹、岡崎竜二²、安井幸夫³、谷口博基¹

(1. 名大理、2. 東理大理工、3. 明大理工)

○ Ichiro Terasaki¹, Shuhei Abe¹, Ryuji Okazaki², Yukio Yasui³, Hiroki Taniguchi¹

(1.Nagoya Univ., 2.Tokyo Univ. Sci., 3.Meiji Univ.)

E-mail: terra@cc.nagoya-u.ac.jp

強相関電子系では、伝導電子同士に強いクーロン斥力が働き、単純なバンド理論の予測を超える異常物性が発現する。特に、遷移金属酸化物では d 軌道の電子が電荷だけでなく、スピンや軌道角運動量の自由度を保っている場合があり、こうした内部自由度の秩序化によって多彩な電子相が実現している。

我々は、このような強相関電子系酸化物を用いた、新規な熱電変換材料の設計と合成を試みている。今回、報告する物質は層状ルテニウム酸化物の一つである Li_2RuO_3 である。この物質の結晶構造を図1の左に示す。この物質は、Li層と $(\text{Ru}_2\text{Li})\text{O}_6$ ブロックが交互に積層した層状化合物であり、 $(\text{Ru}_2\text{Li})\text{O}_6$ ブロックでは、RuとLiが2:1で秩序化し、Ruはハニカム格子を形成する。

三浦らは、この物質が540 Kで構造相転移を伴う電子相転移を引き起こすことを見出した (Miura et al. J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 033705 (2007))。彼らの構造解析によれば、高温相ではほぼ正六角形のRuハニカム格子が低温で3分の1のRu-Ruボンドが短くなるように歪む。このRuのイオンの二量体化によって、磁化率は減少し、抵抗率は非金属的に低温で増大する。

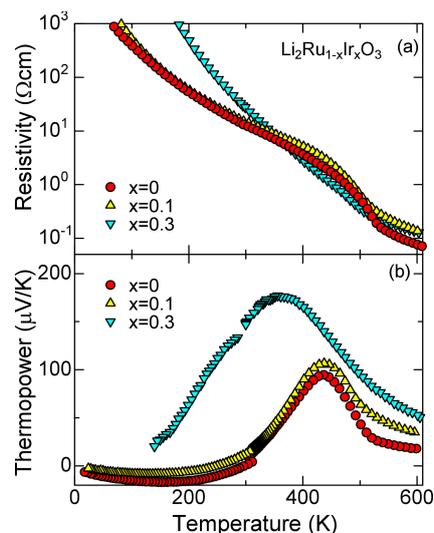
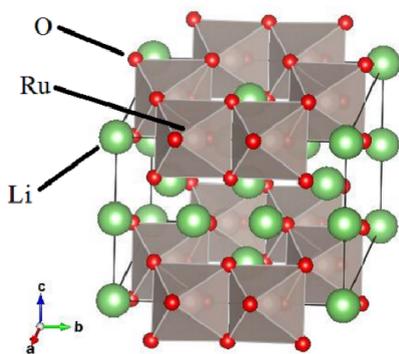
図1: Li_2RuO_3 の結晶構造 (左図) と Ir 置換試料の熱電特性 (右図)

図1の右に、RuサイトをIrで部分置換した試料

の抵抗率と熱起電力の温度依存性を示す。熱起電力は540 Kでキックを持って低温に向かって急速に増大し、430 K付近で最大値をとって低温で小さくなる。Ir置換によってこの相転移が抑えられ、同時に熱起電力の低温での低下が抑えられている。一方、電気抵抗率はIr置換によってあまり大きく変化していないので、ある温度範囲でIr置換は出力因子を増大させる。このことは、従来の熱電半導体では不純物は移動度の低下によって電気特性を劣化させることと対照的であり、強相関電子系による熱電変換材料の設計方針として新しい方向を提示している。詳細なデータの解析やこの系の電子相転移の起源については当日報告する。なおこの内容は Terasaki et al., J. Mater. Chem. (2015) (DOI: 10.1039/C5TC01619C) に印刷中である。