

$\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-\delta}$ ($0.1 \leq x \leq 0.9$) の熱電特性と磁気特性

Thermoelectric and magnetic properties of $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-\delta}$ ($0.1 \leq x \leq 0.9$)

横浜国立大学¹, 防衛大学校², Nuclear Physics Institute³

○(M1) 鎌谷 雄大¹, 中津川 博¹, 岡本 庸一², Charles H.Hervoches³

Yokohama National Univ.¹, National Defense Academy², Nuclear Physics Institute³

°Yudai Kamatani¹, Hiroshi Nakatsugawa¹, Yoichi Okamoto², Charles H.Hervoches³

E-mail: kamatani-yudai-rk@ynu.jp

高温熱電発電で問題となる素子間の熱膨張率の違いを回避するために、同一母相での pn 素子作製が望まれている。酸化物熱電材料は、高温環境で化学的に安定であり、毒性が小さく、安価であるが、同一母相で高い p 型と n 型熱電特性を示す材料はこれまで報告されていない。ペロブスカイト型 Fe 酸化物 (組成式 ABO_3) は、A サイトの三価のランタノイドと二価のアルカリ土類金属の比率を変えることで、B サイトの LSFe^{4+} , LSFe^{3+} , ISFe^{3+} の比率を制御することができる。よって Heikes の式¹よりペロブスカイト型 Fe 酸化物は高い p 型と n 型の熱電性能が期待できる。本研究では $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-\delta}$ に着目し、その結晶構造、熱電特性、磁気特性を評価した。

大気中 1000°C で仮焼きし、一軸加圧でペレット状に成型後、酸素雰囲気中 1200°C ($x \geq 0.6$ では 1150°C) で焼結し、 $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-\delta}$ ($0.1 \leq x \leq 0.9$) の 9 種類の多結晶試料を固相反応法により作製した。結晶構造と磁気構造は X 線及び中性子回折データを RIETAN- FP 及び GSAS-II プログラムでリートベルト解析することで同定した。電気抵抗率、ゼーベック係数、熱伝導率はそれぞれ 550K 以下の温度範囲で測定した。B サイトのスピンの状態は磁化特性の測定により評価した。酸素量はヨウ素滴定法により同定した。

リートベルト解析より、全試料で単斜晶及び斜方晶ペロブスカイト構造 (空間群 $P2_1/m$, $Pnma$) が同定された。一方、室温での中性子回折の結果から、G 型反強磁性磁気秩序が確認され、低温での結果では $x \geq 0.5$ で空間群 $C2/c$ の単斜晶ペロブスカイト構造をとることが分かった。酸素量 $3-\delta$ は全試料で $3-\delta \approx 3$ となり、酸素欠損は少ないことが分かった。B サイトのスピンの状態は、 x が増加するに従って ISFe^{3+} の割合が減少した。また、Fig.1 に示したように、 $x \leq 0.5$ では p 型熱電特性を示し、 $x \geq 0.6$ では n 型熱電特性を示した。特に、p 型は $x = 0.1$ の $ZT = 0.0025$ (550K) が最大値であり、n 型は $x = 0.8$ の $ZT = 0.0038$ (550K) が最大値であった。

$\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-\delta}$ の結晶構造、磁気構造、熱電特性を評価した。全試料で単斜晶及び斜方晶ペロブスカイト構造 (空間群 $P2_1/m$, $Pnma$) と G 型反強磁性構造が同定された。また、 $x \leq 0.5$ では p 型、 $x \geq 0.6$ では n 型の熱電特性を示し、同一母相での pn 素子作製の可能性が期待される。

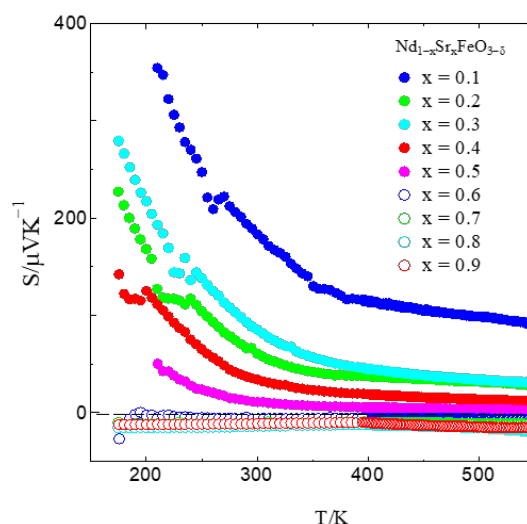


Fig.1 Temperature dependent of Seebeck coefficient for $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-\delta}$

参考文献

- 1) W. Koshibae et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 236603 (2001).