

## O202

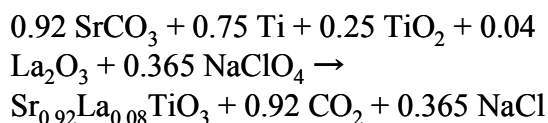
# 燃焼合成と放電プラズマ焼結による La ドープ型 SrTiO<sub>3</sub> 熱電材料製造のための焼結温度の最適化

(北大工)○(学)菊地 麻美\*・(北大エネマテ)(正)沖中 憲之・(北大エネマテ)(正)秋山 友宏

## 1. 緒言

高温工業排熱の有効回収法として、酸化物型熱電材料による熱電発電に耐熱・耐酸化特性の観点から注目が集まっている。中でも、SrTiO<sub>3</sub>はSrサイトの一部をLaで置換することにより高温動作可能な熱電材料となる。著者等は燃焼合成と放電プラズマ焼結により高い熱電特性を持つ多結晶Laドープ型SrTiO<sub>3</sub>熱電材料の開発に成功した<sup>1)</sup>。放電プラズマ焼結体の特性はその焼結時の保持温度、保持時間に大きく影響を受けることが分かっている<sup>2)</sup>。しかし、熱電特性における焼結温度、焼結保持時間の影響の詳細は不明である。著者等は焼結温度が多結晶Laドープ型SrTiO<sub>3</sub>の熱電特性に与える影響を明らかにした<sup>3)</sup>。本研究では、燃焼合成と放電プラズマ焼結により多結晶Sr<sub>0.92</sub>La<sub>0.08</sub>TiO<sub>3</sub>(SLTO)を合成し、SLTOの無次元性能指数(ZT)を最大化する焼結保持時間を調査した。

## 2. 実験方法



上式に従い、所定の量論比で原材料を秤量・混合した後、不活性雰囲気中で燃焼合成した。水洗・乾燥し、平均粒度 5 μm 以下まで粉碎したものを 1573K<sup>3)</sup>でそれぞれ 1、5、15 分間保持し焼結した。製品の同定には XRD 測定、組織観察には SEM を用いて観察し、焼結後の製品の電気伝導率、ゼーベック係数、及び熱伝導率を測定した。また、焼結後の製品を 1373K で 24 時間加熱し、その前後の質量変化から焼結により導入された酸素欠損量を算出した。

## 3. 結果および考察

Fig.1 は、(a) 試薬 SrTiO<sub>3</sub>、(b) 燃焼合成後、および (c) 5 分間放電プラズマ焼結した後の製品の XRD 回折パターンを示す。燃焼合成後のサンプルの XRD パターンが SrTiO<sub>3</sub> のピークと一致していることから、燃焼合成により高純度 SLTO が生成したことが分かる。また、5 分間焼結した後の製品の XRD パターンに主相 SrTiO<sub>3</sub> 以外の第二相のピークが出現していないことから、放電プラズマ焼結中に相変化が起こらなかつたと分かる。Fig.2 は焼結保持時間が無次元性能指数(ZT)に及ぼす影響を示す。保持時間が長くなるにつれて ZT は上昇したが、15 分焼結したサンプルでは ZT が低下した。これ

は焼結時間が長くなるにつれて粒成長が起こり、そのため粒界でのフォノン散乱の影響が低減し、熱伝導率が上昇したためと推察される。本実験条件下では、5 分間焼結したサンプルが、単結晶ドープ型 SrTiO<sub>3</sub> の最高無次元性能指数 0.39<sup>4)</sup> (T=1000K) に匹敵する最大無次元性能指数 0.37 (T=1045 K) を示した。従って、ZT を最大にする焼結保持時間は 5 分間であった。

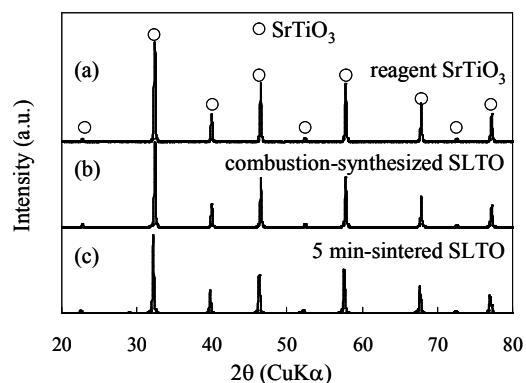


Fig.1 X-ray diffraction patterns of (a) reagent SrTiO<sub>3</sub>, (b) combustion-synthesized SLTO and (c) 5 min-sintered SLTO.

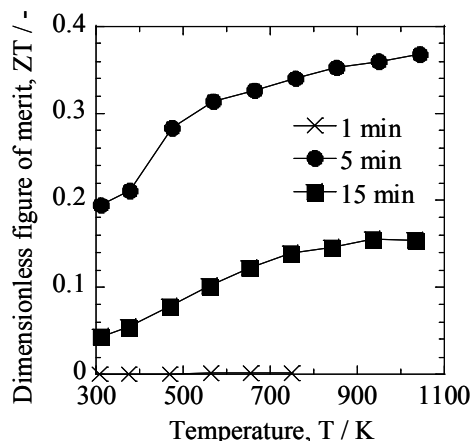


Fig.2 Temperature dependence on dimensionless figure of merit of combustion-synthesized and spark-plasma-sintered SLTO for various holding time.

## 参考文献

- 1) L. Zhang et al.: Materials Transactions 8 (2007) 2088.
- 2) L. D. Zhao et al.: Solid State Sciences 10 (2008) 651.
- 3) A. Kikuchi et al.: Materials Transactions 11 (2009) 2675.
- 4) S. Ohta et al.: Appl. Phys. Lett 87 (2005) 092108.

\*E-mail: asami-k@eng.hokudai.ac.jp