



Large Seebeck coefficients in oxypnictides: a new route towards n-type thermoelectric materials

Loreynne Pinsard-Gaudart^a, David Bérardan^a, Julien Bobroff^b, Nita Drago^a

a- Institut de Chimie Moléculaire et des Matériaux d'Orsay, Univ. Paris-Sud 11

b- Laboratoire de Physique des Solides, Univ. Paris-Sud 11

L. Pinsard-Gaudart, D. Bérardan, J. Bobroff and N. Drago, Phys. Stat. Solidi RRL 2, 185, 2008

D. Bérardan, GdR Thermoélectricité 11-2008

Rapide historique :

- Milieu des années 1990 : Jeitschko

En l'espace de 5 ans, une centaine de composés $RMPnO$!

(R = terres-rares, actinides, M=Mn à Zn, Pn=P, As, Sb)

... mais aucune étude des propriétés

- 2006 : Hosono

→ $LaFePO$ supraconducteur, $T_c = 5K$

- janvier 2008 : Hosono

→ $LaFeAsO_{1-x}F_x$ $T_c = 26K$

- novembre 2008

Meilleurs $T_c > 50K$, plus de 100 publications/preprints depuis janvier, plusieurs familles analogues découvertes

Synthèse



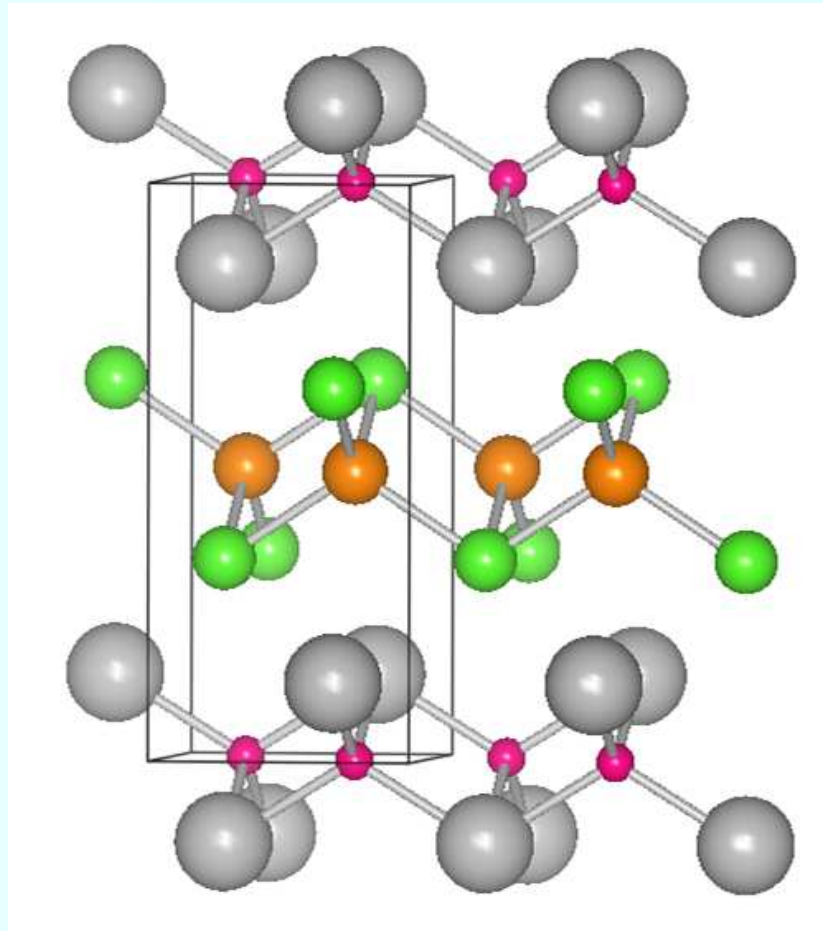
Synthèse classique de matériaux intermétalliques :

- précurseurs LnAs (synthèse préalable), Fe_2O_3 , Fe, FeF_3
- 48h à 1150°C en tube scellé, sous argon
- broyage puis 48h à 1150°C en tube scellé, sous argon

Synthèse de monocristaux possible sous flux (dizaines de μm)

LnFeAsO noirs, stables à l'air

Structure type ZrCuSiAs



Groupe d'espace $P4/nmm$

Structure en couches :
tétraèdres LaO
tétraèdres FeAs

(*tétraèdres déformés*)

$a \sim 3.9 \text{ \AA}$, $c \sim 8.5 \text{ \AA}$

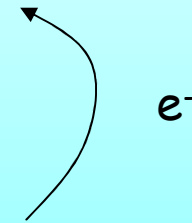
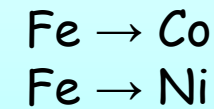
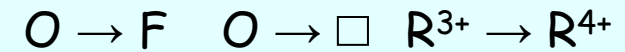
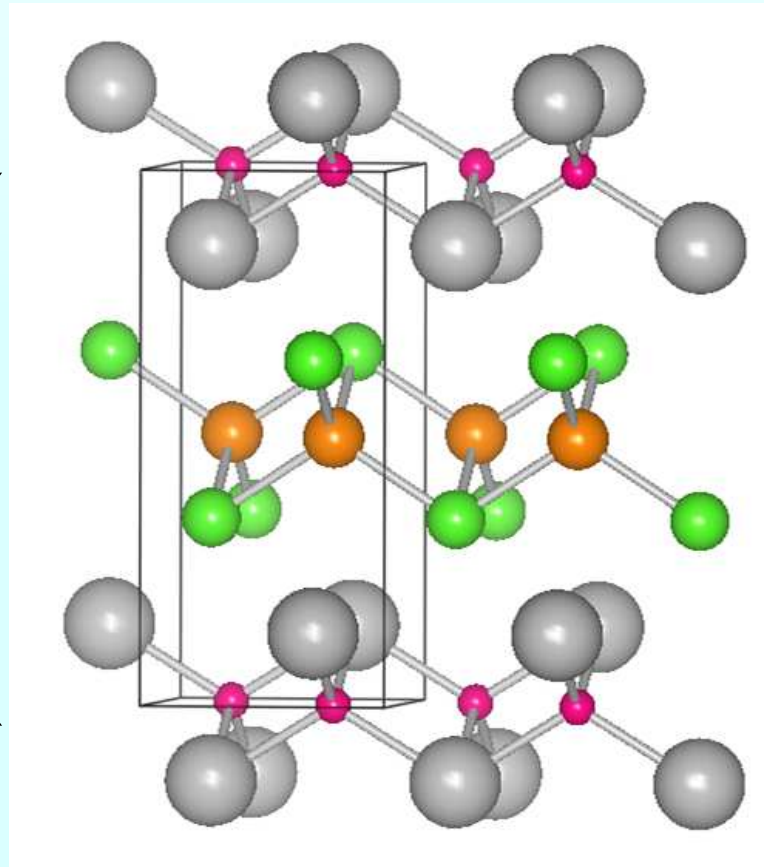
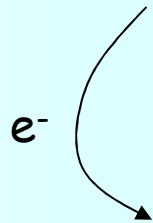
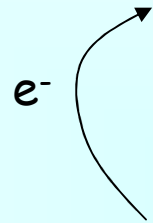
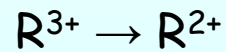
Chimie très riche :

$M = \text{Mn à Zn, Ru, Os}$

$Pn = \text{P, As, O}$

$R = \text{terre-rare, actinide}$

Microstructure lamellaire

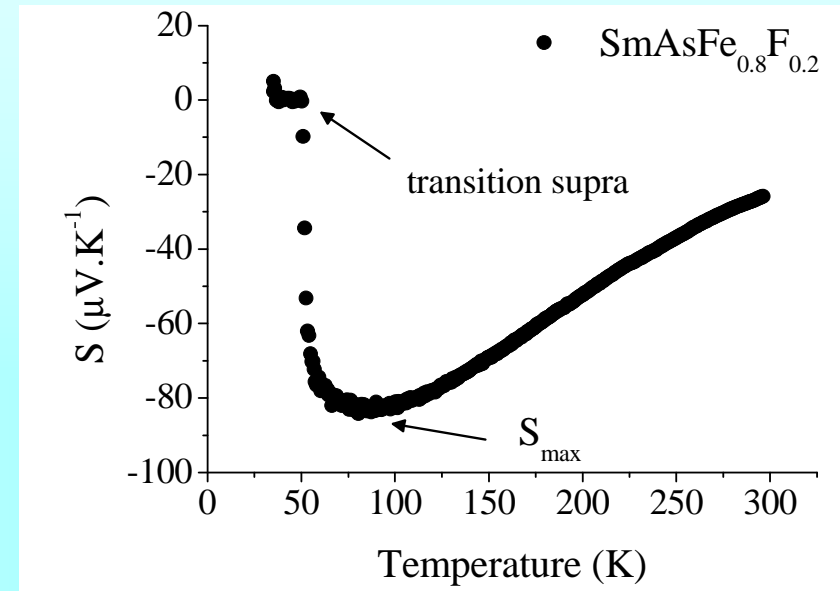
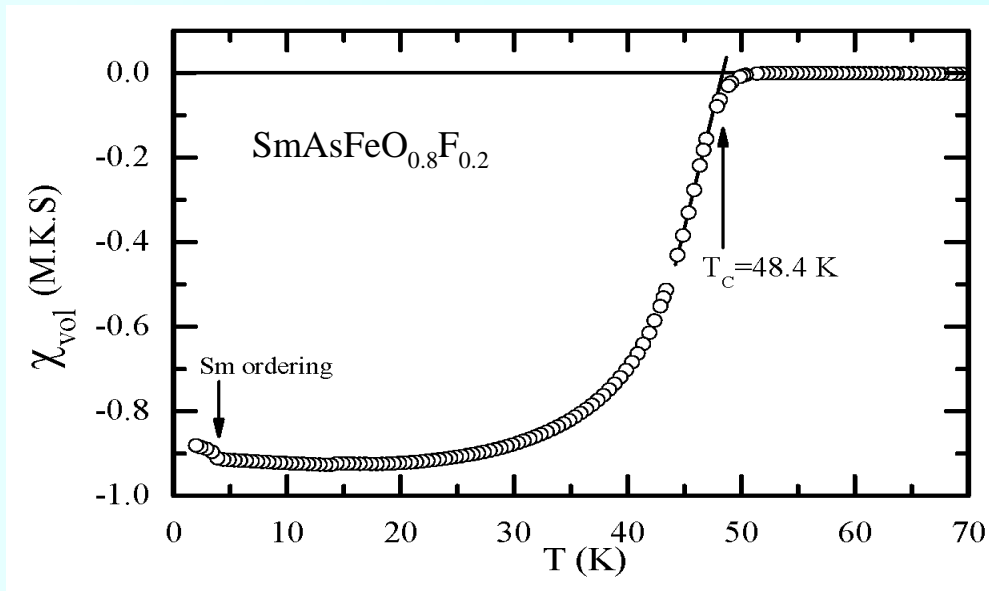


FeAs : couche conductrice, LaO : réservoir de charge
 dopage possible « type p » ou « type n »
 dopage possible sur tous les sites de la structure

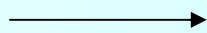
\longrightarrow *Contrôle de la structure électronique au niveau de Fermi*

- mai 2008, Orsay

Utilisation du pouvoir thermoélectrique pour observer la transition supra



valeur élevée de S autour de 100K

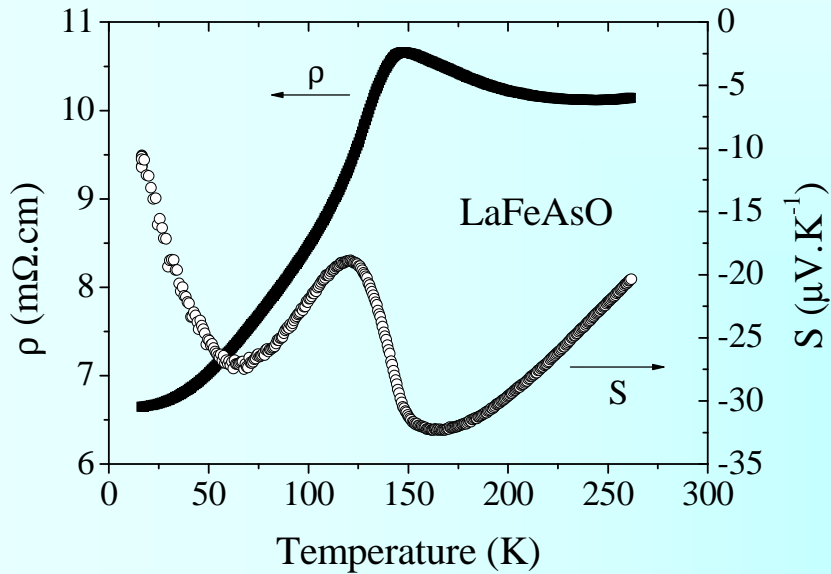


Applications possibles en thermoélectricité ?

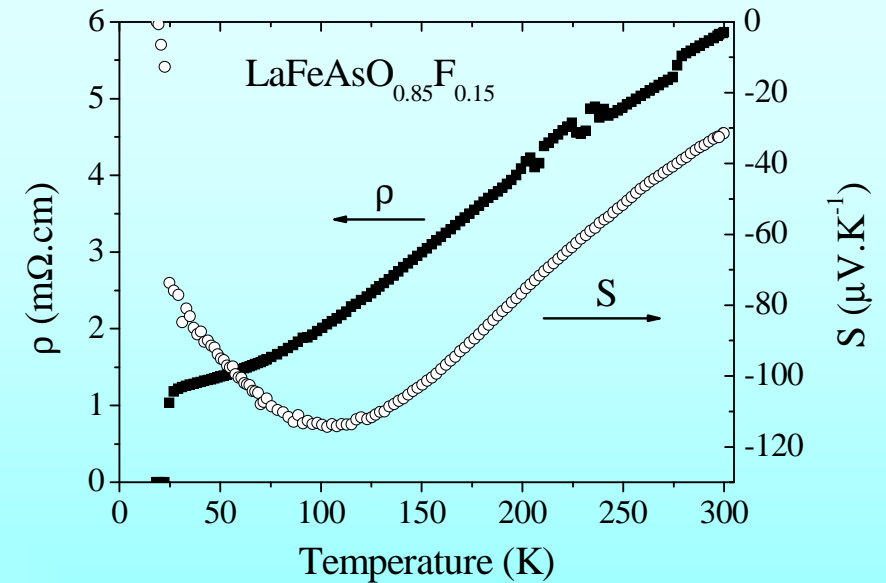
Lien entre supra et thermoélectricité



Composé parent non supra, S faible



Composé dopé supra, S élevé



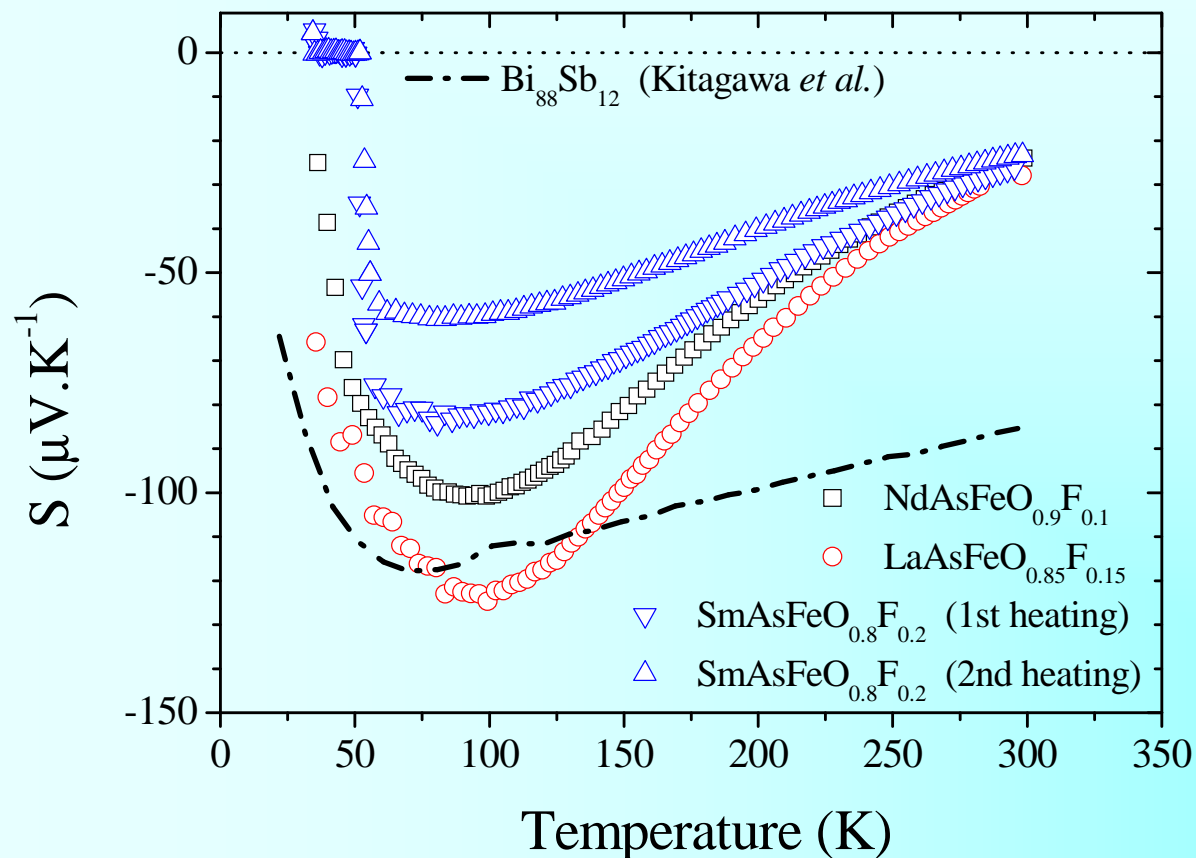
dopage

Dopage →

suppression de l'onde de densité de spin
suppression de la transition de phase
supraconductivité
forte augmentation de S

Origine commune ? Fortes corrélations électroniques ?

Pouvoir thermoélectrique S



Même ordre de grandeur
que dans BiSb

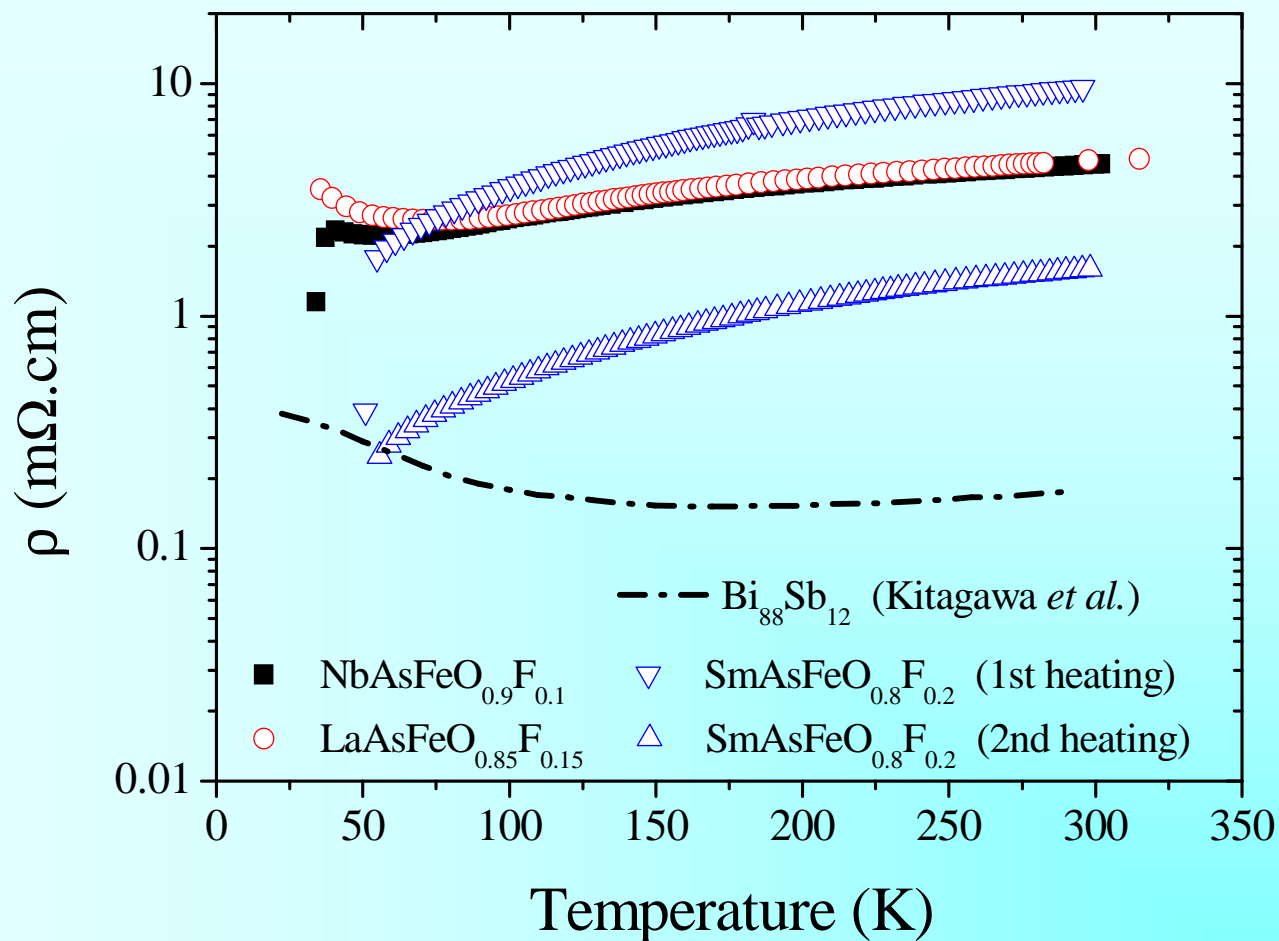
$> 100 \mu\text{V}\cdot\text{K}^{-1}$

Pic de S au voisinage de 100K,
origine inconnue.

Valeurs anormalement élevées pour un supraconducteur

→ système corrélé ? (comportement qui ressemble aux Na_xCoO_2)

résistivité

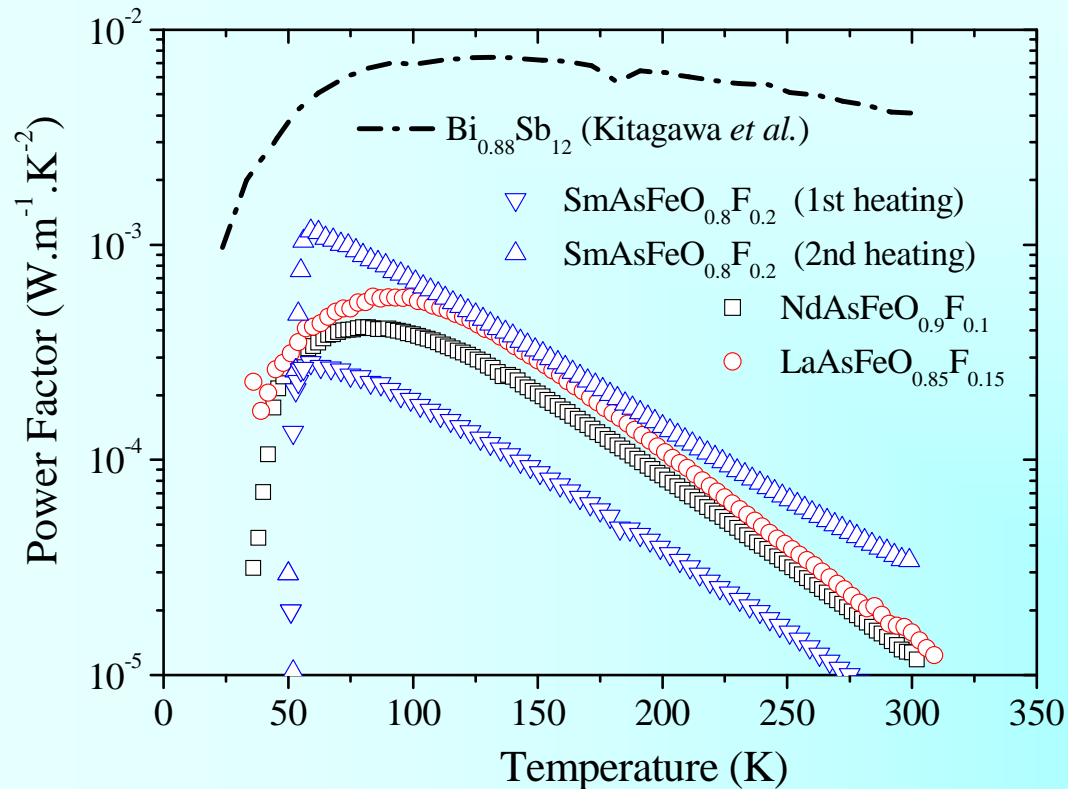


Comportement métallique

ρ pas déraisonnablement plus élevée que dans BiSb

ρ Surestimée (barreaux très mal densifiés) : monocristaux ~ 200 - $400 \mu\Omega$.cm

Facteur de puissance $S^2\sigma$



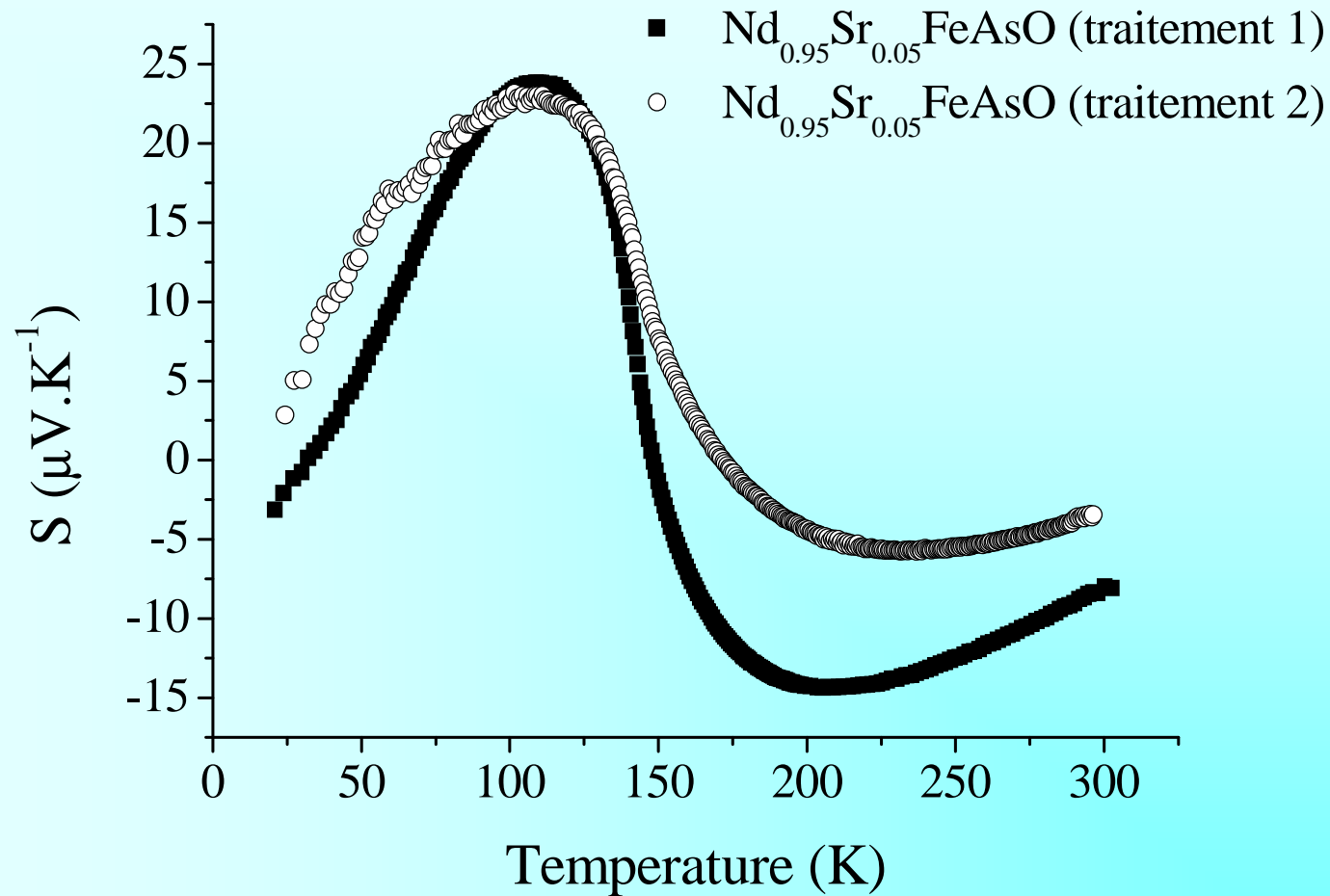
Pic du facteur de puissance au voisinage de 100K

Pas déraisonnablement plus faible que dans BiSb (avec ρ surestimée)

Littérature : $\lambda < 5 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ à basse température

$ZT_{\text{monocristaux}}$ à un facteur 5 de BiSb pour un matériau connu depuis peu → prometteur.

Type p



Type p ou type n en faisant simplement varier le dopage

Bilan :



- *beaucoup de questions ...*

Origine de la supraconductivité ?

Mécanisme non conventionnel ?

Analogie avec les cuprates, mais des différences ?

Origine des fortes valeurs de S ?

Corrélations électroniques ?

- *... et beaucoup de perspectives*

- pour les « chimistes » : un système très riche

- pour les « thermoélectriciens » : quel ZT en type n et en type p ?