

層状オキシサルファイド LaCuSO の輸送特性における銅欠陥の効果Effects of the Cu defects on transport properties of layered oxysulfide LaCuSO 慶大理工, [○]木下寛己, 棚木麻衣, 大草裕己,

後藤陽介, 澁谷泰蔵, 泰岡顕治, 的場正憲, 神原陽一

Keio Univ., Hiroki Kinoshita, Mai Tanaki, Yuki Okusa, Yosuke Goto, Taizo Shibuya, Kenji Yasuoka,

Masanori Matoba and Yoichi Kamihara

E-mail: hiroki96kinoshita@a7.keio.jp

1. 背景

現在 ZrCuSiAs 型の構造を持つ混合アニオン化合物の電子相の研究が注目を集めている. 正方晶 ZrCuSiAs 型混合アニオン化合物 LaCuSO は 3.1 eV のバンドギャップを持つ p 型半導体であり [1], La_2O_2 層と Cu_2S_2 層が c 軸方向に積層した層状構造を有する [2,3]. また LaCuSO は直接遷移型の半導体で, 伝導体下端および価電子帯上端は Cu 4s 軌道および Cu 3d + S 3p 混成軌道でそれぞれ構成されている [4]. 光学的には室温において安定な励起子の存在が確認されており, 励起子発光デバイスとしての応用が期待されている [5].

本研究では $\text{LaCu}_{1-x}\text{SO}$ の試料合成・輸送特性評価を行い, LaCuSO の銅欠陥の効果と電子構造の変化を報告するものである.

2. 方法

本研究で用いた試料はすべて Ar 雰囲気内で固相反応により合成した. 1 次焼成では La (99.9%), Cu (99.9%), S (99.9%) の粉末を La : Cu : S = 1 : 3 : 3, Cu : S = 1 : 1, La : S = 2 : 3, La : S = 1 : 3 の化学量論比で混合したものを石英管内に減圧封入し, 電気炉で熱処理を行うことで LaCu_3S_3 , CuS , La_2S_3 , LaS_3 を合成した. 2 次焼成では La_2O_3 (99.9%) と 1 次焼成で合成したものを化学量論比で混合し, ペレット状に成形後, 1000 °C で 40 時間熱処理を行うことで $\text{LaCu}_{1-x}\text{SO}$ ($x = 0.00, 0.01, 0.02, 0.03$) を得た.

また 4 端子法により電気抵抗率(ρ), 定常法によりゼーベック係数(S), 熱伝導率(κ)の測定を行った.

3. 結果・考察

Fig. 1 に電気抵抗率, ゼーベック係数, 熱伝導率の温度依存性を示した. 電気抵抗率は 300 K において $6.7 \times 10^5 \Omega \text{ cm}$ ($x = 0.00$) から $3.5 \times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$ ($x = 0.02$) まで減少した. 電気抵抗率はキャリア濃度と移動度, ゼーベック係数はキャリア濃度に反比例することから $\text{LaCu}_{1-x}\text{SO}$ 正孔濃度と移動度の増加が考えられる. また熱伝導率の増加からも正孔濃度が増加していることが示唆される.

Wiedemann-Franz 則を用いて電子熱伝導率を求めるとその寄与は $x = 0.02$ の 300 K において 0.01 % であり, 熱伝導率の大部分を格子熱伝導率占めていると考えられる.

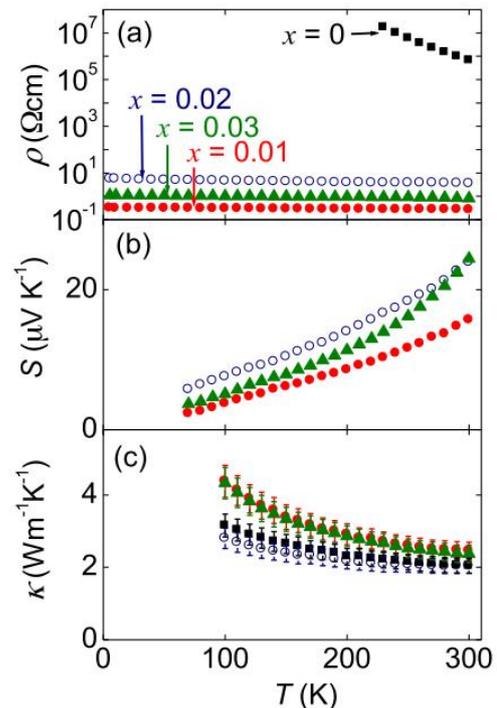


Fig. 1 Electrical and thermal transport properties versus temperature (T) of $\text{LaCu}_{1-x}\text{SO}$. (a) Electrical resistivity (ρ), (b) Seebeck coefficient (S) and (c) thermal conductivity (κ).

4. まとめ

$\text{LaCu}_{1-x}\text{SO}$ ($x = 0.00, 0.01, 0.02, 0.03$) の単相試料を合成した. 銅欠陥により電気抵抗率, ゼーベック係数は減少し, 熱伝導率は上昇することが判明した. 得られた銅欠陥試料は正孔が支配的であった.

参考文献

- [1] K. Ueda, S. Inoue, S. Hirose, H. Kawazoe and H. Hosono, Appl. Phys. Lett. **77**, 2701 (2000).
- [2] M. Palazzi, C. R. Acad. Sci. Paris **292**, 789 (1981).
- [3] W. J. Zhu, Y. Huang, C. Dong and Z. X. Zhao, Mater. Res. Bull. **29**, 143 (1994).
- [4] K. Ueda, H. Hiramatsu, H. Ohta, M. Hirano, T. Kamiya and H. Hosono, Phys. Rev. B **69**, 155305 (2004).
- [5] K. Ueda, S. Inoue, H. Hosono, N. Sarukawa and M. Hirano, Appl. Phys. Lett. **78**, 2333 (2001).