

室温 PLD を用いた高濃度不純物添加 NiO (111) 薄膜の作製と熱電特性評価

Thermoelectric characterization of heavily impurity doped epitaxial NiO (111) thin films grown by room temperature PLD.

東工大物質理工¹, 神奈川県産技総研²

○篠崎 佳晴¹, 中西 昂¹, 金子 智^{2,1}, 木村 好里¹, 松田晃史¹, 吉本護¹

Tokyo Tech. Materials¹, KISTEC²

○Y. Shinozaki¹, S. Nakanishi¹, S. Kaneko^{2,1}, Y. Kimura¹, A. Matsuda¹, M. Yoshimoto¹

E-mail: shinozaki.y.ac@m.titech.ac.jp

【緒言】熱電材料としては Bi_2Te_3 や PbTe 、カルコゲナイド系が研究されてきたが、大気中および高温で安定な酸化物でかつ大きな熱起電力を示す半導体、例えば層状コバルト酸化物 Na_xCoO_2 なども注目されている^[1,2]。近年は、熱電特性向上においてエピタキシャル薄膜、人工超格子や低次元構造のナノ構造の複合材料に関して報告されてきた。また、積層膜の界面や膜の異方性によって格子振動を制御することができる。さらに、薄膜への不純物ドーピングによりキャリア導入だけでなく周期構造を乱しフォノン散乱を誘起する低熱伝導率化も期待できる^[3]。一方、層状構造ではなく岩塩型構造をとる酸化ニッケル(NiO)系熱電材料においても、Li ドープされた p 型 NiO や NiO と MnO_2 などの多元系について熱電材料としての可能性が示唆されている^[4]。我々もこれまでに、非平衡な室温プロセスにより異相析出や再蒸発による組成ずれを抑制した Li ドープの $\text{Ni}_{1-x}\text{Li}_x\text{O}$ ($0 \leq x \leq 0.6$) などのエピタキシャル薄膜合成と電子・光物性を報告してきたが^[5]、これらの高濃度ドーピング領域の薄膜について熱電特性に関する報告はない。本研究では、NiO エピタキシャル薄膜の熱電特性向上を目的として、高濃度不純物添加 $\text{Ni}_{1-x}\text{M}_x\text{O}$ エピタキシャル薄膜の作製と熱電特性について検討した。

【実験・結果】NiO 系エピタキシャル薄膜は KrF エキシマーレーザー($\lambda=248$ nm)を用いたパルスレーザー堆積(PLD)法により $\text{Ni}_{1-x}\text{M}_x\text{O}$ (M:Li,Fe 等, $x \leq 0.6$) をターゲットとして $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001)基板上に成膜した。得られた薄膜について表面形状を原子間力顕微鏡(AFM)により観察し、結晶配向性を X 線回折測定(XRD)および反射高速電子線回折(RHEED)により評価し、直流二端子法により熱電特性評価を行なった。 $\text{Ni}_{0.5}\text{Li}_{0.5}\text{O}$ ターゲットを用いて成膜した薄膜の表面形状は微小結晶粒の凝集を示し、RMS 粗さ ~ 0.3 nm と平坦であった。薄膜の XRD 測定と RHEED 観察結果を Fig.1 に示した。XRD パターンにより $\text{Ni}_{0.5}\text{Li}_{0.5}\text{O}$ (111)配向膜が得られたことが分かり、RHEED により面内異方性が見られたことからエピタキシャル成長を確認した。この薄膜の測定温度に対するパワーファクターのプロットを Fig.2 に示す。高温におけるゼーベック係数の増加に伴い、パワーファクターの向上が観察された。当日は異なる作製条件での熱電特性についても報告する。

[1] H.Beyer et al., *Physica E*, **13**, 965–968(2002).

[2] I. Terasaki et al., *Phys. Rev.*, **B56**, R12685 (1997).

[3] Jing-Feng Li et al., *NPG Asia Mater.*, **2**(4), 152–158(2010).

[4] J. Y. Zhang et al., *J.Mater. Chem. C*, **6**, 2275(2018).

[5] N. Shiraishi et al., *Jpn. J. Appl.Phys.*, **49**, 108001 (2010).

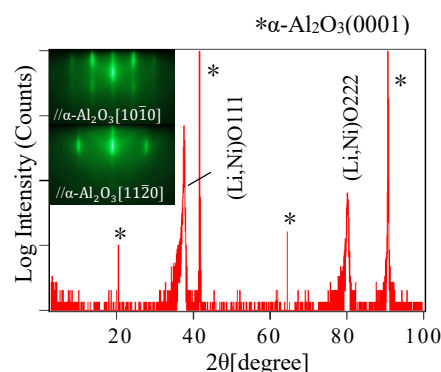


Fig.1 XRD and RHEED patterns of 50 mol% of Li-doped NiO thin film on a sapphire (0001) substrate grown at room-temperature.

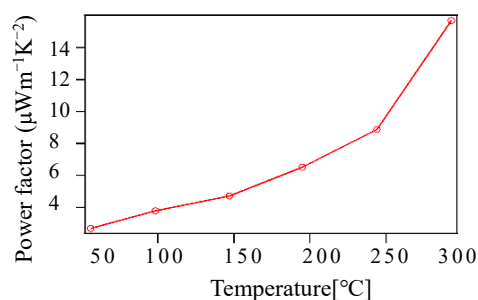


Fig.2 Power factor of $\text{Ni}_{0.5}\text{Li}_{0.5}\text{O}$ epitaxial thin film on a sapphire (0001) substrate grown at room-temperature.