熱起電力と導電率のトレードオフの関係を破る酸化物熱電材料 $LaNiO_3$ の高出力特性

Large power-factor enhancement by breaking thermoelectric trade-off relation in transition metal oxide, $LaNiO_3$

東工大[1]，JST さきがけ[2]，物材機構[3]，筑波大[4] ○樋口 雄飛[1]，片瀬 貴義[1,2]，只野 央将[3]，藤岡 淳[4]，井手 啓介[1]，平松 秀典[1]，細野 秀雄[1]，神谷 利夫[1]

Tokyo Tech.[1], PRESTO, JST[2], NIMS[3], Tsukuba Univ[4] ○Yuhi Higuchi[1], Takayoshi Katase[1,2], Terumasa Tadano[3], Jun Fujioka[4], Keisuke Ide[1], Hidenori Hiramatsu[1], Hideo Hosono[1], Toshio Kamiya[1]

E-mail: y-higuchi@mces.titech.ac.jp

【はじめに】資源量が豊富で毒性の低い酸化物熱電変換材料は熱的・化学的に安定であり、メンテナンスフリーの熱電変換素子への応用が期待されるが、カルコゲナイド等の実用材料と比べて、熱電変換効率は未だ低いままである。熱電材料の性能を向上させるためには出力因子 (PF = $\sigma \times S^2$) を増加させる必要があるが、良好な半導体では、キャリア密度を増やして導電率（σ）を増加させるとゼーベック係数（S）が減少するトレードオフの相関があるために、大きく性能を上げられないという問題があった[1]。本研究では、遷移金属酸化物 $LaNiO_3$ の薄膜に引張歪から圧縮歪を制御することで S とσを同時に向上させることができ、従来のトレードオフの相関を破って PF を増大できることを見出したので報告する。

【実験方法】$LaNiO_3$ 薄膜は、パルスレーザー堆積法 (PLD, KrF エキシマレーザー、基板温度 700ºC, 酸素圧は 25Pa）により膜厚 25 nm で作製した。$LaNiO_3$ 薄膜を格子定数の異なる $YAlO_3$ (面内格子不整合 $\Delta a/a$= –4.0%), $LaAlO_3$ (–1.3%), $NdGaO_3$ (+0.7%), LSAT (+0.9%), $SrTiO_3$ (+1.9%), $DyScO_3$ (+2.8%), $GdScO_3$ (+3.4%) の各種単結晶(001)基板上にエピタキシャル成長させ、室温から 10 K までの温度範囲でσと S を測定した。

【結果】格子定数の異なる単結晶基板を用いることで、$LaNiO_3$ 薄膜の面直/面内の格子定数比（c/a）を 0.996（引張歪）から 1.025（圧縮歪）まで制御できた。薄膜の c/a 比に対する、室温のσと S の変化を図に示す。c/a 比の増加に伴って、σは 1.3×10^3 Scm^{-1} から 3.8×10^4 S cm^{-1} に増加し、S の絶対値も同時に 7 μV K^{-1} から 22 μV K^{-1} に増加した。その結果、室温の PF は 0.05 μW / K^2cm から 18 μW / K^2cm へ約 10^3 倍増加し、トレードオフの相関を破って、熱電特性を向上できることが分かった。当日は、キャリア輸送特性の歪依存性、及び、第一原理計算による電子構造・格子振動解析から、トレードオフの相関を超えた熱電特性向上の起源についても発表する。

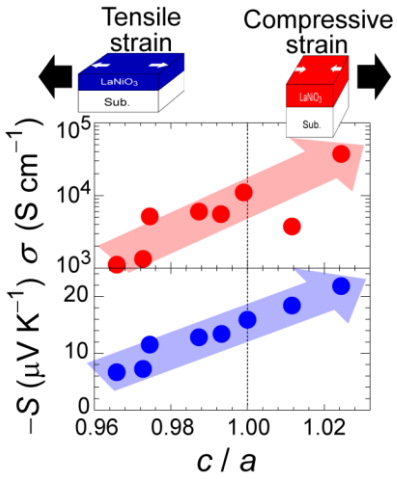

Figure: Lattice constant ratio (c/a) dependence of conductivity (σ) and Seebeck coefficient (S) for $LaNiO_3$ films at room temperature.

[1] G. J. Snyder and E. S. Toberer, Nat. Mater. 7, 105 (2008).

© 2020年 応用物理学会