エピタキシャル ZnO 薄膜/Al_2O_3の歪制御によるゼーベック係数増大

Seebeck coefficient enhancement by tailoring strain in epitaxial ZnO films/Al_2O_3

阪大院基礎工 1，東邦大 2 ○(D)小松原 祐樹 [1]，石部 貴史 [1]，大江 純一郎 [2]，中村 芳明 [1]
Grad. School of Eng. Sci., Osaka Univ.[1], Toho Univ.[2] ○Yuki Komatsubara[1], Takafumi Ishibe[1], Jun-ichiro Ohe[2], and Yoshiaki Nakamura[1]
E-mail: u838364f@ecs.osaka-u.ac.jp

【背景・目的】　現在、エネルギーハーベスティング技術の一つとして、廃熱を電気へ直接変換可能な熱電発電が注目されている。熱電変換効率向上には、出力因子（$S^2\sigma$; S はゼーベック係数、σは電気伝導率）の増大、熱伝導率（κ）の低減が必要である[1,2]。これまで、我々は SnO_2 透明薄膜を様々な基板上にエピタキシャル成長し、結晶ドメイン制御して低欠陥密度界面を形成することによって高移動度化、低κ化を実現し、透明熱電材料としての利用の可能性を示してきた[3]。近年、我々は ZnO と格子不整合度の異なる c、r-Al_2O_3 基板上にエピタキシャル Al doped ZnO（AZO）薄膜を成長したところ、AZO/r-Al_2O_3 の移動度と S が、AZO/c-Al_2O_3 のそれより高い値を示すことを報告した[4]。移動度の増大機構に関してはドメイン界面の欠陥密度の観点から説明ができるが、詳細な S 増大機構に関しては未報告であった。そこで本研究では、AZO/r-Al_2O_3 における高 S 化の物理を明らかにすることを目的とする。

【実験方法】　本薄膜成長には、パルスレーザー堆積装置を用いた。蒸着源として、ZnO 粉末と α-Al_2O_3 粉末を混合し、1100℃で焼結した AZO ターゲットを用意した。作製したターゲットを用い、酸素雰囲気下で c、r-Al_2O_3 基板上に AZO 薄膜をエピタキシャル成長した。構造評価には X 線回折法（XRD）と原子間力顕微鏡法（AFM）を、熱電特性評価には ZEM-3 と自作電気特性測定装置を用いた。光学特性評価には紫外可視分光光度計を用いた。

【結果】　S のキャリア密度（n）依存性を取得すると、低 n 領域（≦1×10^{20} cm^{-3}）では、AZO/r-Al_2O_3 の S はイオン化不純物散乱律速の理論曲線よりも高く、一方で AZO/c-Al_2O_3 の S は理論曲線よりも低い値を示した。AZO/r-Al_2O_3 に関して、S の温度依存性から有効質量（m）を求めたところ、文献値よりも高い値を示した。これより、この S 増大は基板との格子不整合差由来の歪による m 増大に起因すると考えられる。一方、高 n 領域（≧1×10^{20} cm^{-3}）では、AZO/r-Al_2O_3 と AZO/r-Al_2O_3 のどちらも理論曲線よりも高い S を示した。よって高 n 領域での S 増大は、Al 導入量の増加効果に起因すると考えられる。本講演では、本試料で得られた S 増大とその物理について詳述する。

【謝辞】本研究の一部は、基盤研究 A（JP19H00853）、新学術領域研究（JP22H04510）、特別研究員奨励費（22J100300）の支援により行われた。

【引用】[1] T. Ishibe, et al., ACS Appl. Mater. Interfaces 10, 37709−37716 (2018). [2] S. Sakane, et al., Mater. Today Energy 13, 56-63 (2019). [3] T. Ishibe, et al., Appl. Phys. Lett. 118, 151601 (2021). [4] 小松原 祐樹『2022 年 第 83 回 応用物理学会秋季学術講演会』、21p-C102-4、2022 年 9 月 20-23 日.