PLD 法で作製した硫化鉄薄膜の熱電特性

Thermoelectric properties of iron sulfide thin films fabricated by PLD method

秋田県立大 [1]，秋田産業技術センター[2]

○播間愛実 [1]，長南安紀 [1]，小宮山崇夫 [1]，小谷光司 [1]，山口博之 [1]，山内繁 [1]

菅原靖 [2]，関根崇 [2]，杉山重彰 [2]

Akita Prefectural Univ. [1], Akita Industrial Technology Center [2],

°Aimi Harima[1], Yasunori Chonan[1], Takao Komiyama[1], Koji Kotani[1], Hiroyuki Yamaguchi[1], Shigeru Yamauchi[1]

Yasushi Sugawara[2], Takashi Sekine[2], Shigeaki Sugiyama[2]

E-mail: m23b006@akita-pu.ac.jp

【緒言】

近年、豊富な鉱物資源の熱電特性に注目した研究が NIMS・森や広島大・末國らから報告されている。たとえば、硫化銅の界面抵抗を小さくすれば、673K の高温熱源を利用したときに熱電変換効率$\eta_{max} = 7.8\%$が得られると報告されている[1]。

一方、我々は黄鉄鉱（FeS_2）に注目している。黄鉄鉱は硫化鉄鉱の一つであるが、鉄と硫黄のクラーク数が鉄は 4 番目、硫黄は 15 番目に大きいことから、やはりこれも資源量が豊富な鉱物資源といえる。ゼーベック係数は状態密度曲線の急峻さに関係するが、黄鉄鉱は光吸収係数が極めて高く、状態密度が大きい場合、フェルミ面の位置を最適化すれば高いゼーベック係数も期待できる。そこで我々は硫化鉄の化学量論比を変化させキャリア量を調節した薄膜を作製し、熱電特性などの電子物性を評価した。

【実験方法】

薄膜は PLD 法で成膜した。その際、プルームにバイアス電圧を印加することで、化学量論比の制御を図った。酸化亜鉛の場合は、この方法により、Zn と O の成分比が変化することが報告されており[2]、今回はこの方法を硫化鉄薄膜作製に応用した。Nd:YAG レーザー（4 倍波 266nm：繰り返し周波数 10Hz）、をアブレーション用の励起光パルスとして用い、室温の石英基板上に 0.2W（20mJ/pulse）×120min、0.4W（40mJ/pulse）×60min で成膜した。バイアス電圧として基板-ターゲットホルダ間に設置したメッシュ状のモリブデン製電極に 0V、±50V、±100V を印加した。薄膜試料は XRD で相同定をし、SEM-EDX で化学量論比、熱電評価装置により室温での導電率・ゼーベック係数を評価した。

【結果】

XRD 測定の結果、作製した薄膜で Fe_7S_8、FeS_2 のピークが確認でき、メインピークは FeS_2 であった。SEM-EDX 測定の結果、印加電圧を加えると極性によらず硫黄の成分比が増加した。それに伴い、ゼーベック係数も増加し、導電率も微増した。これはバイアスにより薄膜の硫黄欠損が抑制されてキャリア濃度が減少した一方、移動度が増加したことが考えられる。出力因子は、+100V 印加成膜時が 7.18W/mK^2、±50V 印加成膜時が 2.03W/mK^2 であった。

【参考文献】

[1]末國，他，まてりあ, 54 巻, p. 335(2015）.

[2] K. Komatsu., et al., Phys. Status Solidi C, 10, 1280 (2013).