

0²⁻アニオンを選択的変位したエピタキシャル SnO₂ 薄膜/r-Al₂O₃ における熱伝導率低減

Thermal conductivity reduction in epitaxial SnO₂ film/r-Al₂O₃ with selectively manipulated O²⁻ anion

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI², 滋賀医科大³, 産総研⁴

○石部 貴史^{1,2}, 成瀬 延康³, 目良 裕³, 山下 雄一郎⁴, 中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.², Shiga Univ. Medical Science³, AIST⁴

○Takafumi Ishibe^{1,2}, Nobuyasu Naruse³, Yutaka Mera³, Yuichiro Yamashita⁴,

Yoshiaki Nakamura^{1,2}

E-mail: ishibe.takafumi.es@osaka-u.ac.jp

【背景】 窓ガラス等の未利用熱を電気として変換する透明熱電発電が注目されている。熱電性能向上には、無次元性能指数 $zT=S^2\sigma T\kappa^{-1}$ (S : ゼーベック係数、 σ : 電気伝導率、 κ : 熱伝導率、 T : 絶対温度)の増大が求められる [1]。しかし、これら 3 熱電物性の相関関係のため性能向上は難しい。透明 SnO₂ は、社会応用に適した安価・無毒な元素から構成され、かつ σ が高いため透明熱電材料として有望である。しかし、 κ が高いため zT は低い値に留まる。これまで我々は、ドメインエンジニアリングを提案し、低界面欠陥面密度による高 σ と界面フォノン散乱増強による低 κ を同時実現した [2]。 κ は $\sim 5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (バルクの 1/10) まで低減されたものの、社会応用には不十分である。そこで本研究では、メインの伝導帯には寄与せず、共鳴準位効果を起こしうる O²⁻アニオンに注目し、これを選択的に変位させて、高 $S^2\sigma$ を保ちつつ、O 空孔でのフォノン散乱による大幅 κ 低減を狙う。具体的には、選択的 O²⁻アニオン変位を施した SnO₂ 薄膜における κ 低減の観測とその低減機構の解明を目的とする。

【方法】 高真空環境下 (3×10^{-6} Pa) にてパルスレーザー蒸着法を用いて SnO₂ 薄膜を r-Al₂O₃ 基板上に温度 893 K でエピタキシャル成長した。この薄膜に As イオンを注入し、n 型ドーピングするとともに Sn よりも軽い O を選択的に変位させた。構造評価には、透過型電子顕微鏡法 (TEM)、ラマン分光法を用いた。 κ 測定には、 2ω 法及び自作 Time domain thermoreflectance 法を用いた。

【結果】 TEM 観察より、20 nm 間隔のドメイン界面が導入された SnO₂ 薄膜がエピタキシャル成長していることがわかった。ラマン分光法より、As イオン注入薄膜の O 空孔量は、未イオン注入のそれよりも多く、加えて Sn 欠損が無いことがわかった。これより、選択的に O 空孔を導入することに成功したと言える。この As イオン注入薄膜の κ は、大幅に低減し ($\sim 2.5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$)、選択的 O²⁻アニオン変位が有効であることがわかった。本講演では、 κ 低減とその機構について詳述する。

【謝辞】 本研究の一部は科研費 基盤研究 A (JP23H00258)、基盤研究 B (JP23K26056)、若手研究 (JP24K17613) の支援により行われた。

【参考文献】 [1] Y. Nakamura, et al., *Nano Energy* **12**, 845 (2015)., [2] T. Ishibe, et al., *Appl. Phys. Lett.* **118**, 151601 (2021).