3*ω* 法を用いた Bi-Te 系熱電厚膜の熱伝導率測定Ⅲ Thermal conductivity measurement of Bi-Te film by 3*ω* method III 北陸先端大,○西野俊佑,小矢野幹夫,大平圭介 JAIST, ○Shunsuke Nishino, Mikio Koyano, and Keisuke Ohdaira Email: s_nishino@jaist.ac.jp

熱電変換材料の低次元化による ZT 向上の可能性が理論的に示されて以降, ナノスケールの熱電 材料に関する研究が盛んに行われている. 我々のグループでは, インク状にした Bi-Te 系材料の ナノ微粒子を用いて作製した, 表面の粗い Bi-Te 系厚膜試料の熱伝導率を 3ω法で測定する手法を 開発してきた. 前回の発表では, 自作の小型加圧セルを 3ω測定装置に組み込み, 厚膜試料の熱伝 導率を推定する手法を提案した [1]. この手法に基づき,本研究では,熱処理した Bi-Te 厚膜試料 の熱伝導率測定を行った.

厚膜試料の作製方法を次に示す. インク状の p 型 Bi₂Te₃ 微粒子試料をアルミブロック上に滴下 し,1時間真空乾燥を行った. その後,赤外線ランプ加熱炉 (MILA-5000; ULVAC, Inc.) で5分間, 400°C, Ar ガスフロー中で熱処理した.

 3ω 測定時の実験配置と熱流の様子を Fig.1 に示す.石英ガラス基板にアルミニウム細線(幅 100 μ m,厚さ 100 nm)を真空蒸着した後,Cat-CVD 法[2] で絶縁層となる SiN_x膜(厚さ 100 nm)を堆積させた.その上に、厚膜試料をアルミブロックごと置き、加圧セルで挟み込んだ.このとき、細線から発生した熱は、試料方向の熱流 \dot{Q}_{sample} および基板方向の熱流 \dot{Q}_{sub} となって緩和していく. 3ω 測定を行い、二方向の熱流の比率を求め、そこから厚膜試料の熱伝導率を推定する.

未処理および熱処理後の厚膜試料について,試料厚さ L を変化させて 3ω 測定を行い,系全体

の熱伝導率 κ_{total} を求めた. Figure 2 に示すように, いずれの試料でも κ_{total} は L^{-1} に対して直線的に増加 する. $\kappa_{total} - L^{-1}$ 直線の傾きは熱処理後試料のほうが 大きいが,切片は一致することが注目される. 傾き および切片をそれぞれ a, bとすると,二方向熱流の 比率は $\dot{Q}_{sample}/\dot{Q}_{sub} = ab^{-1}L^{-1}$ で表せる [3]. この 熱流比と既知の石英ガラス基板の熱伝導率を用い て熱処理後試料の κ_{sample} を計算すると,0.69~1.26 Wm⁻¹K⁻¹となった. この値は,前回報告した,保護 剤を含む未処理の厚膜試料 (0.1~0.4 Wm⁻¹K⁻¹)より 高く,バルク試料 (1.3 Wm⁻¹K⁻¹)[4] に近い.未処 理試料では,Bi-Te 粒子間に保護剤が残存しており, これが熱伝導を妨げていると考えられる.この結果 は,熱処理を行うことで保護剤が除去され,粒子同 士が直接接触していることを示唆する.

[1] 西野,小矢野,大平,第74回応用物理学会秋季学術講演会 (20p-C13).

[2] S. Okada and H. Matsumura, Jpn. J. Appl. Phys., 36, 7035 (1997).
[3] S. Nishino *et al.*, J. Electron. Mater., DOI:10.1007/s11664-014-2993-9
[4] B. Poudel *et al.*, *Science* 320, 634 (2008).







