

II 型 Si クラスレート薄膜に含まれる不純物の評価および低減

Evaluation and reduction of impurities in type II Si clathrate thin films

○上原康暉、砂場昭吾、浦野和俊

大橋史隆、久米徹二、伴隆幸、山家光男、野々村修一(岐大院工)

○Koki Uehara, Shogo Sunaba, Kazutoshi Urano,

Fumitaka Ohashi, Tetsuji Kume, Takayuki Ban, Mitsuo Yamaga, Shuichi Nonomura (Gifu Univ.)

E-mail: t3130005@edu.gifu-u.ac.jp

【緒言】 II 型 Si クラスレート ($\text{Na}_x\text{Si}_{136}$) は Si 原子からなる籠状構造をもつ物質であり、籠内にゲスト原子 (Na) が内包されているため金属的性質を示す。籠内に Na を含まないゲストフリー (Si_{136}) という状態では、禁制帯幅が約 1.9eV の直接遷移型半導体であるため太陽電池の新規光吸収材料として期待できる[1]。我々は Si 基板上に $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜を合成し、ヨウ素処理という Na 除去技術を用いてゲストフリー化を行い、太陽電池への応用を目指している[2]。しかしながら、近年の $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜の組成分析結果から膜表面もしくは膜中には炭素や酸素が多く含まれていることが分かった。本研究では $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜に含まれる不純物の原因の特定および低減を試みた。

【実験方法】 $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜への不純物の混入過程として出発材料および合成後の洗浄過程に注目した。出発材料としてこれまで使用していたケロシン中に保管していた Na (99%)の他にガラスチューブ中に密閉されている Na インゴット(99.95%)を用いて $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜の合成を行い比較した。また、 $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜合成後の洗浄方法として超脱水エタノールもしくは超純水を用いた。試料の評価は、ラマン散乱分光法、エネルギー分散型 X 線分析(EDX)、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた。

【実験結果】 ケロシンに保管された Na を用いて $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜の合成後に超脱水エタノールで洗浄した試料(従来)およびガラス管中に密閉された Na インゴットを用いて $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜の合成後に超純水で洗浄した試料(改善後)の組成分析を行った。図 1 はそれぞれの試料における EDX による組成分析結果である。従来の作製方法で作製した試料では酸素や炭素が多く検出されたが、作製方法を改善して作製した試料では酸素、炭素ともに比率が低くなっていることがわかる。このことから $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ 膜に含まれていた不純物は出発材料である Na もしくは洗浄過程が大きく影響していると考えられる。**【参考文献】**

[1] A. M. Guloy et al., Nature 442, 320 (2006) ,

K. Moriguchi et al., PRB 62, 7138 (2000)

[2] 林 他, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 京都, 2013 年 9 月 16-20 日, 18a-A4-6

【謝辞】 本研究は先端的低炭素化技術開発(JST-ALCA)の一環として行われた。関係各位に深く感謝します。

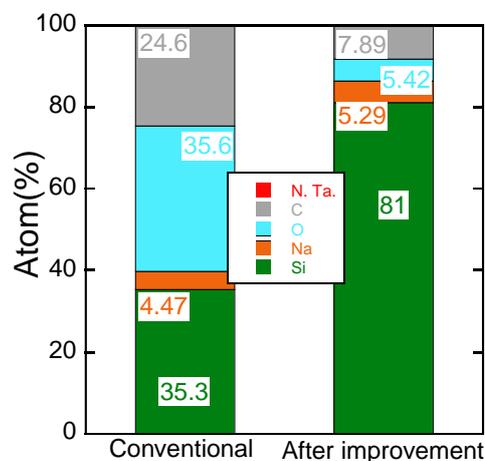


Figure1. Atomic composition analysis of $\text{Na}_x\text{Si}_{136}$ films prepared with different Na lumps and washing method