$MnSi_{1.7}$ と SiGe の複合構造における熱電変換特性の Ge 量依存性

Dependence of thermoelectric properties on Ge ratio in composite of $MnSi_{1.7}$ and SiGe

日立研開，°黒崎 洋輔，籔内 真，西出 聡悟，早川 純

Hitachi Ltd., Research & Development Group,

°Yosuke Kurosaki, Shin Yabuuchi, Akinori Nishide, and Jun Hayakawa

E-mail: yosuke.kurosaki.uy@hitachi.com

$MnSi_{1.7}$は材料性能指数 ZTが 1.0 に達する無毒元素で構成される有望な熱電変換材料である [1]。ZT 向上に向けた熱伝導率(κ)低減には複合構造化によるフォノン散乱制御が有効であり、我々は $MnSi_{1.7}$ と Si の多積層膜において κ が $MnSi_{1.7}$ 系で最小値となる 1.0 W/Km まで低減することを明らかにした [2]。しかし Si は半導体であるため電気抵抗率(ρ)が高いことが課題の一つである。そこで本研究では、Si よりもバンドギャップが小さくかつ重元素である Ge を $MnSi_{1.7}$ と Si からなるナノスケール複合構造へ添加し、Ge 添加による複合構造の熱電特性の変化を調べた。

本研究では、スパッタリング法を用いてサファイア基板上に Mn を乗せた Si ターゲットと $Si_{1-x}Ge_x$ ターゲットを交互に製膜した Sapphire//[Si+Mn(5.0nm)/$Si_{1-x}Ge_x$(1.5nm)]$_{12}$ を熱処理し、$MnSi_{1.7}$ と SiGe からなる複合構造薄膜を作製した。熱処理条件は、Ar(+10%H_2)雰囲気中において、800°C で 20 秒間とした。ゼーベック係数(S)と ρ はアドバンス理工社製の ZEM-3 にて二端子法および四端子法にて評価した。またピコ秒レーザーを用いた熱反射率法により、室温における膜面垂直方向の κ を測定した。

Fig. 1(a)に、Ge 量 x を変化させたときの複合構造薄膜の S と ρ の温度依存性を示す。Ge 量が増加しても S は大きく変化しないが、ρ は単調に減少する。結果として、Fig. 1 (b)に示すように、出力因子は単調に増加する。これは、粒界相である SiGe 相中の Ge 量増加により移動度が増加したためと考えられる。また Fig. 1 (b)に κ の Ge 量依存性を示す。x が 0.0 から 0.2 に増加すると、κ は 2.0 W/Km まで低減する。これは粒界相 Si の一部が Si よりも重い Ge に置換されることで、複合構造全体の κ 低減に寄与したためと考えられる。x が 0.5 以上で κ が大きく変化しないのは、SiGe 相の結晶化温度が低下し、結晶化が促進したためと考えられる。以上の結果より、$MnSi_{1.7}$ と Si の複合構造の性能向上には Ge 添加が有効であることが明らかになった。

本成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務の結果得られたものである。

1) A. Yamamoto *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55** (2016) 020301.
2) Y. Kurosaki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109** (2016) 063104.

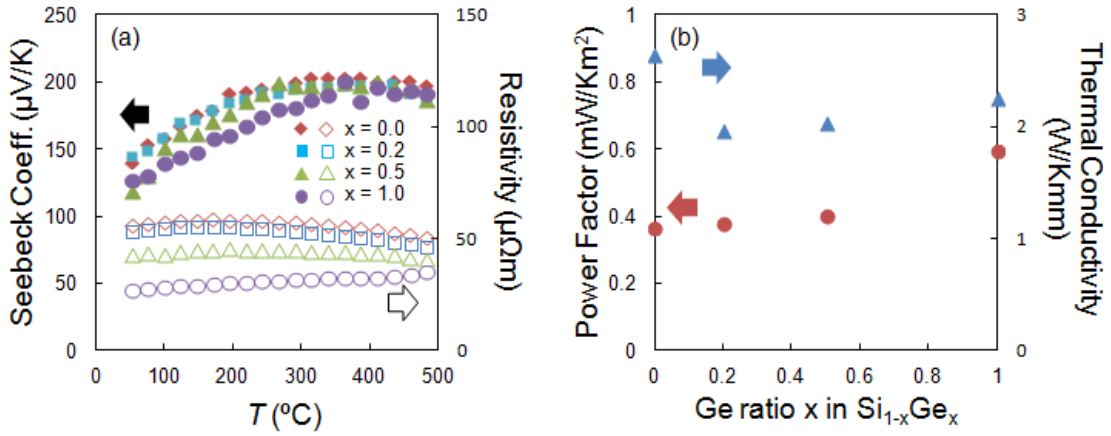

Figure 1 (a) Temperature dependence of S and ρ for Quartz//[Si+Mn(5.0)/$Si_{1-x}Ge_x$(1.5)]$_{12}$ annealed at 800°C.
(b) Ge ratio dependence of power factor and κ for Quartz//[Si+Mn(5.0)/$Si_{1-x}Ge_x$(1.5)]$_{12}$ annealed at 800°C.

© 2017年 応用物理学会