

多結晶 Ge 薄膜の極低温(80℃)層交換合成とフレキシブル熱電応用

Ultra-low temperature (80 °C) layer exchange growth of polycrystalline Ge thin films for flexible thermoelectric application

○草野欽太¹, 辻美紀江¹, 末益崇¹, 都甲薫^{1,2} 1. 筑波大, 2. JST さきがけ

○Kinta Kusano¹, Mikie Tsuji¹, Takashi Suemasu¹, and Kaoru Toko^{1,2}

1. Univ. of Tsukuba, 2. JST PRESTO

E-mail: s1720357@s.tsukuba.ac.jp

【はじめに】フレキシブル熱電デバイスは IoT 機器のセンサ電源として高い期待を集めている。我々は、Al 誘起層交換を用いることで、高性能化と低温プロセスの両立を実現し、プラスチック上で最高レベルの出力因子を誇る熱電 SiGe 薄膜の形成に成功した^[1]。今回、触媒金属に Zn を用いることで、極低温で多結晶 Ge 薄膜を層交換合成できることを明らかにした。その成長特性、および得られた Ge 薄膜の熱電特性を報告する。

【実験方法】石英ガラス上に Zn 層 (50 nm) を堆積した後、大気暴露 ($t_{\text{air}} = 0-1$ h) により ZnO 界面層を形成する。その後、非晶質 Ge 層 (50 nm) を堆積し、N₂ 雰囲気中で熱処理 (80-200 °C) を施すことで、層交換を誘起した (Fig. 1)。堆積はスパッタリング法によって行われた。層交換後の試料について、上部 Zn 層を塩酸で除去した。

【結果・考察】全ての試料作製条件において、低温 (≤ 150 °C) で層交換が発現し、特に $t_{\text{air}} = 0$ min の試料においては、80 °C という極低温で層交換が完了した (Fig. 2)。Ge 中の Zn の残留量は、EDX の検出感度 ($\sim 1\%$) 以下であった。また、 t_{air} の短時間化に伴い、成長速度と核発生頻度は上昇した。これは、 t_{air} が長いほど厚い ZnO 界面層が形成されることに起因している。EBSD 評価から、各 t_{air} の試料で同等の小粒径 (数 nm $\sim$ 200 nm) であると分かった (Fig. 3)。高い熱抵抗が期待され、現在調査中である。正孔密度は熱電素子に適した 10^{20} cm⁻³ オーダーであった。合成温度が低温であることで、多量の空孔が発生したと考えられる。80 °C 合成した試料の室温の出力因子は 240 $\mu\text{W}/\text{mK}^2$ であり、低温合成 (< 200 °C) した熱電薄膜として最高であることが判明した (Fig. 4)。一般的なプラスチックの耐熱温度以下であり、汎用性の極めて高いフレキシブル熱電変換素子を創出する成果である。

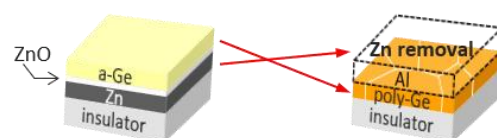


Fig. 1 Schematic of the sample preparation.

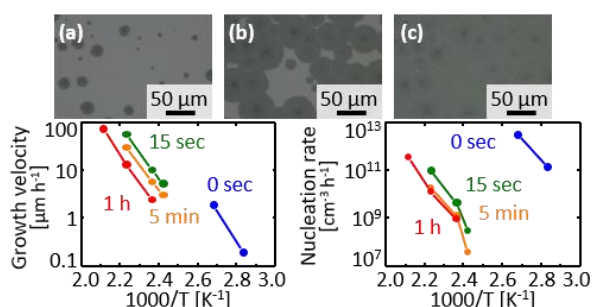


Fig. 2 OM images of the samples at $t_{\text{air}} = 5$ min annealed at 150 °C for (a) 10 h, (b) 16 h and (c) 22 h. Arrhenius plots of (d) growth velocity and (e) nucleation rate different with t_{air} .

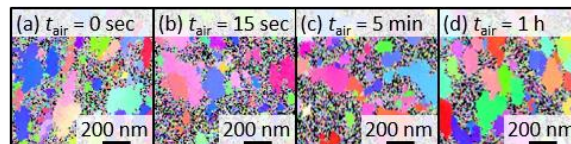


Fig. 3 EBSD images of the samples annealed at (a) 80 °C, (b)-(c) 140 °C, and (d) 150 °C for 100 h.

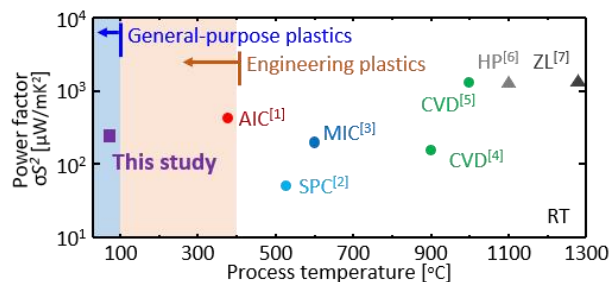


Fig. 4 Power factor of Si_{1-x}Ge_x ($0 \leq x \leq 1$) as a function of process temperature.

- [1] 草野他, 2018 年春応物, 17a-F102-8.
 [3] L. Lindorf *et al.*, JAP **120**, 205304 (2016).
 [5] J. Lu *et al.*, Nanoscale **7**, 7331 (2015).
 [7] J. P. Dismukes *et al.*, JAP **35**, 2899 (1964).

- [2] H. Takiguchi *et al.*, JJAP **50**, 41301 (2011).
 [4] M. Takashiri *et al.*, JAP **100**, 054315 (2006).
 [6] G. Joshi *et al.*, Nano Lett. **8**, 4670 (2008).