

# 熱伝導率低減に向けた自己整合 Sn ナノドット上多結晶 $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ 層形成

## Poly-crystalline $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ Formed on Self-assembled Sn Nanodots for Thermal Conductivity Reduction

静大院工<sup>1</sup>, 静大電研<sup>2</sup>, 内海 隼也<sup>1</sup>, 石丸 知邦<sup>1</sup>, 早川 泰弘<sup>2</sup>, 志村 洋介<sup>2</sup>

Grad. School Eng., Shizuoka Univ.<sup>1</sup>, Research Institute of Electronics, Shizuoka, Univ.<sup>2</sup>,

<sup>o</sup>Junya Utsumi<sup>1</sup>, Tomokuni Ishimaru<sup>1</sup>, Yasuhiro Hayakawa<sup>2</sup>, Yosuke Shimura<sup>2</sup>

E-mail: utsumi.junya.14@outlook.jp

**1. はじめに** 熱電変換デバイスは熱エネルギーを直接電気エネルギーに変換するものであり、低環境負荷で駆動部を持たない発電が期待されている。熱電変換は材料の両端の温度差に基づいて発電を行うため、熱伝導率の低い材料を用いて温度差を維持することが重要である。先行の研究では Si ナノメッシュによりフォノン散乱を増大させることで熱伝導率の低減が実現されており[1]、また多結晶化による粒界や重い原子の導入でもフォノン散乱を増大させることが可能だとわかっている[2][3]。そこで我々は重い Sn 原子を含む多結晶  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  に着目した。N. Chen らは Sn ナノドット (Sn-ND) 上に Ge をスパッタ法により堆積することで高 Sn 組成の多結晶  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  が形成可能であると報告している[4]。本研究では Sn-ND 上に形成した多結晶  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  薄膜の内部構造、結晶性、Sn 組成が熱伝導率に与える効果を調べた。

**2. 実験方法** 分子線エピタキシー法(MBE)を用いて  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に室温(RT)で 5 nm の Sn 層を堆積させた後、同 MBE 装置内にて 275 °C で 30 分間の熱処理を施し Sn-ND を形成した。その後、Sn-ND 上に Ge を 40 nm、基板温度を RT~225 °C で変化させて堆積することで結晶化度と Sn 組成の異なる  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  を作製した。走査電子顕微鏡 (SEM)、透過電子顕微鏡 (TEM)、X 線回折法 (XRD) により Sn-ND および  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  層の構造を調べ、ラマン分光法、時間領域サーモリフレクタンズ (TDTR) 法により  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  の結晶化度、Sn 組成および熱伝導率を調べた。

**3. 実験結果および考察** 作製した Sn-ND の直径は 10~30 nm であり、平均直径は 17 nm であった(Fig.1)。堆積温度 225 °C で Ge を堆積した場合凝集が観察され(Fig.2)、堆積温度の低減に伴い表面が平坦化した。断面 TEM 観察により Sn-ND および Sn-ND 上に Ge を堆積させた試料共に格子縞が確認され、多結晶化していることが分かった。また XRD 測定では Ge 堆積温度 100 °C 以上の試料では  $\beta\text{-Sn}(220)$  の回折ピークが観察されず、堆積時に  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  合金が形成されたと示唆される。Figure 3 に  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  および Sn を導入していない Ge 薄膜試料の結晶化度と熱伝導率の関係を示す。 $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  の結晶化度は、ラマン分光法で得られたスペクトルを結晶化部と非結晶化部の 2 つのピークに分離し(Fig.3 inset)、これらのピーク面積強度比から算出した。堆積温度の上昇に伴い、結晶化度は 52.29 % から 86.82 % と上昇し、結晶化部に対応するラマンピーク位置から求めた Sn 組成は 12.84 % から 4.78 % と低下した。結晶化度の増大によって熱伝導率は増加し、また Sn の導入により熱伝導率が低下していることが確認できた。

**4. まとめ** Sn-ND 上への Ge の堆積により、Sn 組成 4.78 %~12.84% の  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  を作製した。結晶化度の増大に伴い熱伝導率は高くなり、 $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  は Sn の導入によって同結晶化度の Ge 薄膜より熱伝導率の低下を実現した。今後は同試料の電気特性を調査する。また Sn-ND を多結晶  $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  内部に残すことができればナノ構造効果を加えた多種フォノン散乱機構による熱伝導率の大幅な低減が期待される。

[参考文献][1] J.-K. Yu, *et al.*, Nat. Nanotechnol. **5**, 718 (2010). [2] A. Majumdar, Science **303**, 777 (2004). [3] M. Kurosawa, *et al.*: Ext. Abstr; ICSI-9, 2015, 15106. [4] N. Chen, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 050301(2017).

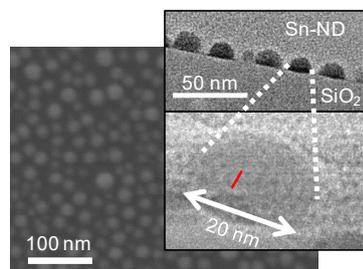


Figure 1. Plan-view SEM image of Sn-ND and the inset is XTEM image.

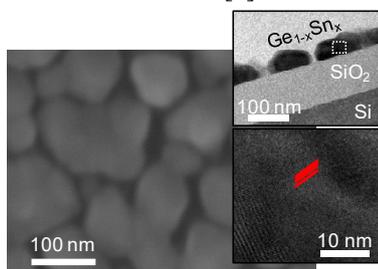


Figure 2. Plan-view SEM image of Ge deposited on Sn-ND at 225 °C and the inset is XTEM image

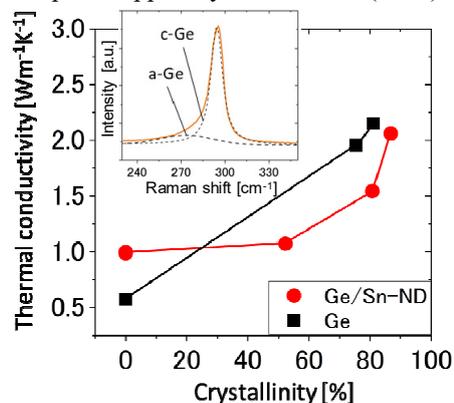


Figure 3. Thermal conductivity versus crystallinity of Ge thin film for Ge on Sn-ND samples and Ge layers without Sn-ND. The inset is the Raman spectrum of the Ge deposited on Sn-ND at 150 °C.