

Si-Ge-Au 混合粉の重力場中熱処理

The annealing of Si-Ge-Au powders in strong gravitational field

防衛大¹, 物材機構材料開発・情報基盤部門², 熊本大³ ○岡本庸一^{1,2}, 徳田誠³, 緒方雄大³, 宮崎尚¹, 真下茂³

Natl. Def. Acad.¹, NIMS MaDIS CMI², Kumamoto Univ.³, °Yoichi Okamoto^{1,2}, Yudai Ogata³, Makoto Tokuda³, Hisashi Miyazaki¹, Tamotsu Mashimo³

E-mail: oubutsu@jsap.or.jp

緒言 Si/Ge/Au 系アモルファス人工格子薄膜は、準安定相ではあるが、非常に高い熱電能（最大で 30 mV · K⁻¹ 以上）を示す。¹⁾ その高い熱電能を原因是、人工格子薄膜を熱処理する過程で、薄膜中に現れるナノドットにある事が判明している。^{2,3)} Si/Ge/Au 系アモルファス人工格子薄膜中にナノドットが生成される過程は、複雑で多段階にわたる事は判明しているが、細部はまだ明らかではない。また、Si/Ge/Au 系アモルファス多層薄膜の再結晶化で、重力印加が大きな影響を与える事も判明している。^{4,5)} 今回は、Au, Ge, Si の微粉末を混合、圧粉して、高重力（約 5 万 G）下で、熱処理を行い、その焼成の様子を観測した。

実験 今回、作成した試料は表 1 に示すように組成を変えた 6 種類である。試料は、所定量に秤量した微粉体を約 1.3 ton · cm⁻² の圧力を加えて、ステンレスケースに封入した後に、図 1 に示すような装置を用いて、高重力下、N₂ ガス中、約 24 時間、673 K の熱処理を行った。使用した微粉体は、Au は 100 nm 級、Si および Ge は 1 μm 級である。熱処理後の試料は、SEM (Hitachi High Technology SU-6600) で切断面の観察と、EDX (Oxford X-Max V_{acc}=15 kV) で切断面の組成測定を行った。

実験結果 図 2 に S-2 の SEM 写真を示す。この写真の下方向に向けて、約 40 万 G の重力（遠心力）が印加されている。SEM の拡大写真と EDX の分析結果から、中央下部と右側に見える 0.3~0.5 mm 程度の三角形の粒子は、Au を含む Ge の凝集成長した粒子である。それ以外の部分は、Au をほとんど含まない Si 粒子の集合である。

SEM 観察と EDX 分析の結果から、以下の事が判明した。1. 673 K の熱処理では、SiGe 薄膜の実験結果とは異なり、Si と Ge は別々に存在しており、混合していない。2. Au は、Ge に溶け込んでいる。3. Au は Si に溶け込んでいない。4. Ge 同士で粒子は初期熱処理前よりも大きく成長している。5. Si 同士でも、粒子は初期熱処理前よりも大きく成長している。特に大きな粒子は、重力印加方向の下側で見られる。

結論 この熱処理温度と時間では、当初の予想とは異なり、Si と Ge の混合（合金化）は、進行しなかった。しかしながら、Si 同士、Ge 同士の結晶成長、粒子の成長は進行していた。一部では、0.3 mm を超える大きな粒子も見られた。粒子成長の詳細な議論には、もう少しだけ高い熱処理温度、より長い処理時間の実験が必要である。

Table 1 List of samples.

Sample	composition ratio (mass%)
S-1	(Si : Ge : Au) = (90 : 0 : 10)
S-2	(Si : Ge : Au) = (45 : 45 : 10)
S-3	(Si : Ge : Au) = (0 : 90 : 10)
S-4	(Si : Ge : Au) = (36 : 38 : 26)
S-5	(Si : Ge : Au) = (0 : 82 : 18)
S-6	(Si : Ge : Au) = (42 : 43 : 15)

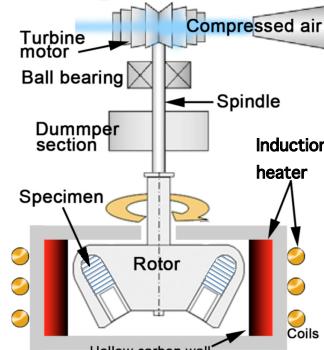


Fig.1 High-temperature ultracentrifuge system.



Fig. 2 SEM photo of sample S-2.

- 1) Y. Okamoto, H. Uchino, T. Kawahara and J. Morimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, (1999) L945.
- 2) H. Takiguchi, M. Aono, and Y. Okamoto, Jpn. J. Appl. Phys. **50**, 041301 (2011).
- 3) Y. Okamoto, S. Watanabe, H. Miyazaki, and J. Morimoto, to be published in Jpn. J. Appl. Phys.
- 4) 岡本庸一, 緒方雄大, 徳田誠, 宮崎尚, 守本純, 真下茂, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会予稿集, 13a-D13-10 (2015).
- 5) Y. Okamoto, M. Aono, H. Miyazaki, Y. Ogata, M. Tokuda, and T. Mashimo, Defect Diffusion Forum **363**, 156 (2015).