

Ag 誘起層交換による p/n 型 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ 熱電薄膜の合成

p- and n-type $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ thermoelectric thin films formed by Ag-induced layer exchange

○辻美紀江¹, 村田正行², 山本淳², 末益崇¹, 都甲薫^{1,3}

(1. 筑波大院 数理物質, 2. 産総研, 3. JST さきがけ)

○Mikie Tsuji¹, Masayuki Murata², Atsushi Yamamoto², Takashi Suemasu¹, and Kaoru Toko^{1,3}

(1. Univ. of Tsukuba, 2. AIST, 3. JST PRESTO)

E-mail: s1920329@s.tsukuba.ac.jp

【はじめに】 SiGe 混晶は、宇宙用の熱電変換素子として高い実績を持つ。我々は Al や Zn を触媒とした「層交換」を用いることで、p 型 SiGe 熱電薄膜を低温合成してきた [1,2]。一方、触媒金属にあらかじめ不純物を添加しておくことで、層交換後の SiGe 膜中に不純物が自己組織的にドーピングされ、熱電性能が向上することを明らかにしてきた [3]。今回、SiGe に対してドーパントとならない Ag を用い、SiGe の Ag 誘起層交換を初めて検討した。さらに、不純物添加による p/n 型 SiGe 熱電薄膜の合成に成功するとともに、熱電デバイス動作を実証したので報告する。

【実験方法】 石英ガラス上に Ag, AgB (B 濃度: 10%) および AgAs (As 濃度: 10%) 層を 50 nm 堆積した。その後、非晶質 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ (x : 0, 0.15, 0.3) 層を 50 nm 堆積し、 N_2 雰囲気中で熱処理 (500 °C, 15 h) を施すことで、層交換を誘起した (Fig. 1)。堆積にはスパッタリング法を用いた。層交換後の試料について、上部 Ag 層をリン硝酸で除去した。

【結果・考察】 作製した全試料において、低温 (≤ 500 °C) で層交換が発現し、多結晶 SiGe 層の形成が確認された (Fig. 2(a))。また EBSD 評価から、得られた SiGe 層は小粒径 (< 3 μm) であることが判明した (Fig. 2(b))。高い熱抵抗が期待される。ホール効果測定から、AgB を用いた試料では p 型伝導、AgAs を用いた試料では n 型伝導を示した (Fig. 3(a))。x 増加に伴う正孔密度と電子密度の減少は、SiGe 中の B および As 固溶限の減少を反映していると考えられる。導電率の挙動は、キャリア密度と結晶粒径を反映している (Fig. 3(b))。p 型膜については正、n 型膜については負のゼーベック係数が得られ、測定温度とともに増大した (Fig. 3(c))。また、その大きさはキャリア密度と SiGe 混晶の基礎物性に従う傾向を示した。室温での出力因子は、n 型で $1000 \mu\text{W}/\text{mK}^2$ ($\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$)、p 型で $230 \mu\text{W}/\text{mK}^2$ (Si) に及び、高い熱電特性が得られた (Fig. 3(d))。さらに、本手法で得られた p 型および n 型 SiGe 薄膜を用いて TEG を作製し (Fig. 4(a))、出力測定を行ったところ、室温、温度差 10 K において 0.15 nW の出力が得られた (Fig. 4(b))。測定構造の最適化や厚膜化によって、さらなる出力の向上が見込まれる。

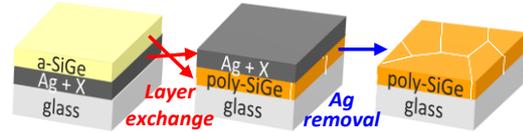


Fig. 1. Schematic of the sample preparation. (X: B or As)

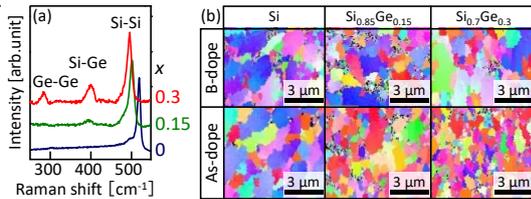


Fig. 2. (a) Raman spectra and (b) EBSD images of the samples.

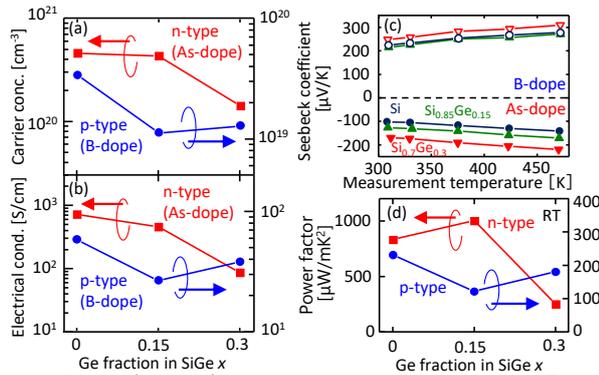


Fig. 3. Thermoelectric properties of the samples at RT.

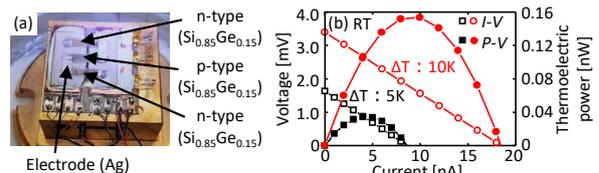


Fig. 4. Thermoelectric I-V and I-P curves of TEG at RT.

[1] K. Kusano *et al.*, ACS Appl. Energy Mater. **1**, 5280 (2018). [2] K. Kusano *et al.*, APEX. **12**, 055501 (2019). [3] M. Tsuji *et al.*, J. Phys. D. **53**, 075105 (2020)