

熱電特性評価に向けた CaF_2 基板上への Sb-doped n-BaSi_2 膜の成長

Growth of Sb-doped n-BaSi_2 films on CaF_2 substrates for thermoelectric characterizations

筑波大¹, °吉田 竜一¹, 辻美紀江¹, 青貫翔¹, 山下雄大¹, 都甲 薫¹, 末益 崇¹

Univ. Tsukuba¹, °Ryuichi Yoshida¹, Mikie Tsuji¹, Sho Aonuki¹, Yudai Yamashita¹, Kaoru Toko¹, Takashi Suemasu¹

E-mail: labyoshidayoshidayoshidalab@gmail.com

【背景・目的】

我々は薄膜熱電変換素子の新規材料として BaSi_2 に着目している。優れた熱電特性を有する熱電材料はレアメタルや有毒な元素を含むのに対し、 BaSi_2 は資源が豊富で有毒ではない Ba と Si で構成され、第一原理計算により、室温付近で $600 \mu\text{V/K}$ を越える非常に大きなゼーベック係数を有することが明らかになっている。さらに室温付近で 1.56 W/mK と小さな熱伝導率を持つことが確認されている^[1]。従来、 BaSi_2 のエピタキシャル成長には、Si 基板が用いられてきた^[2]。しかし、熱電特性測定時には Si 基板の寄与を排除することは容易でなく、 BaSi_2 膜のみの特性評価は難しい。先行研究では、絶縁基板である CaF_2 基板上に template 層として Si 膜を堆積した後、RDE 法で BaSi_2 template 層を形成し、MBE 法により undoped BaSi_2 の成長に成功した^[3]。また、Sb ドーピングにより、 10^{19} cm^{-3} を超える高電子密度を達成している^[4]。そこで、本研究では、熱電特性評価に向けて、 CaF_2 基板上に Sb-doped $\text{n}^+\text{-BaSi}_2$ 膜を作製することを目標とした。

【実験】

表面の残留不純物を除去するため、 CaF_2 基板を基板温度 $T_s = 430^\circ\text{C}$ で 30 分間加熱した。次に、Si のエピタキシャル成長を行った。 $T_s = 180^\circ\text{C}$ で a-Si を 1.2 nm 堆積し、 $T_s = 800^\circ\text{C}$ で加熱し結晶化させる SPE 法によって Si の種結晶を成膜し、 $T_s = 700^\circ\text{C}$ で MBE 法により Si を 9.0 nm 成長した。そして、Ba のみを供給する RDE 法により BaSi_2 テンプレート層を成長し、Ba と Si、Sb を同時供給する MBE 法により Sb-doped BaSi_2 膜を 200 nm 成長した。その際、Sb のセル温度(T_{Sb})を 250 または 350°C に設定した。最後に、*in situ* で a-Si の表面パッシベーション膜を 3 nm 堆積した。結晶性をラマン分光法(励起波長 532 nm)、薄膜法 XRD で評価した。

【結果・考察】

Figure 1 に $T_{\text{Sb}} = 250^\circ\text{C}$ および 350°C における Sb-doped BaSi_2 膜のラマンスペクトルを示す。 BaSi_2 中の Si 四面体由来の振動モードのピークが得られたことから Sb をドーピングした試料から BaSi_2 が成長していることがわかる^[5]。

Figure 2 に各試料の薄膜法 XRD パターンを示す。結果から成長した BaSi_2 は多結晶であることがわかる。

- [1] H. Kohsuke *et al.*, J. Appl. Phys. **102** (2007) 063703.
- [2] Y. Inomata *et al.*, Jpn J. Appl. Phys. **43** (2004) L478.
- [3] K. Toh *et al.*, Physics Procedia **11** (2011) 27.
- [4] M. Kobayashi *et al.*, Appl. Phys. Express **1** (2008) 051403.
- [5] Y. Terai *et al.*, Jpn J. Appl. Phys. **56** (2017) 05DD02.

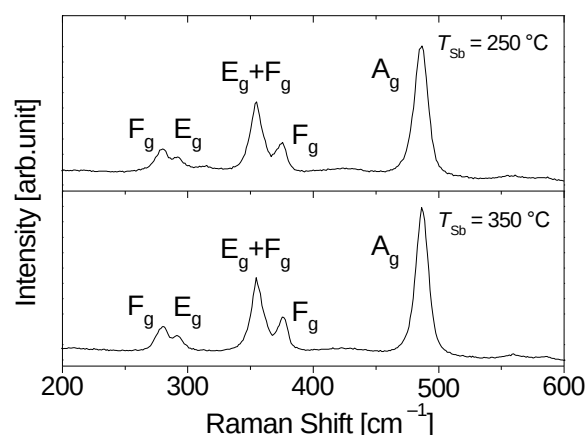


Fig. 1 Raman spectra of Sb-doped BaSi_2 films grown at $T_{\text{Sb}} = 250$ and 350°C .

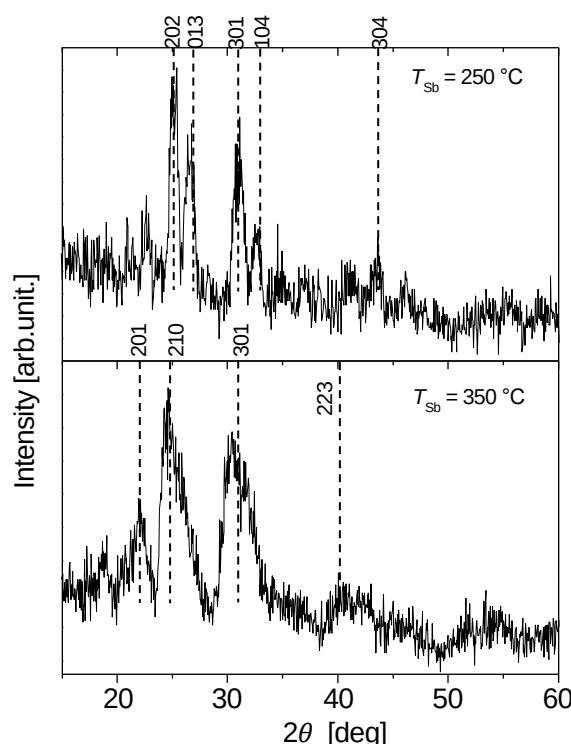


Fig. 2 2θ XRD patterns of Sb-doped BaSi_2 films grown at $T_{\text{Sb}} = 250$ and 350°C .