Gaドープ Si_{1-x}Sn_x 薄膜で観測した巨大ゼーベック熱電能の理解 Understanding of a big Seebeck coefficient observed for Ga-doped Si_{1-x}Sn_x layers

⁰佐藤啓¹, 洗平昌晃^{1,2,3}, 中塚理^{1,2}, 黒澤昌志^{1,3} (1. 名大院工, 2. 名大未来研, 3. 名大高等研究院) ⁰K. Sato¹, M. Araidai^{1,2,3}, O. Nakatsuka^{1,2}, and M. Kurosawa^{1,3} (1. Grad. Sch. of Eng., Nagoya Univ., 2. IMaSS, Nagoya Univ., 3. IAR, Nagoya Univ.) E-mail: ksato@alice.xtal.nagoya-u.ac.jp, kurosawa@nagoya-u.ac.jp

[はじめに] Si チップ上への混載可能な新規熱電変換材料として, 我々は Si_{1-x}Sn_x に着目している. 2% の Sn 添加で, 熱伝導率は Si に比べ 1/15 程度に低減できると理論予測されている[1]. Sn の固溶限は 0.1%であるが, 固相成長法を用いれば 20%以上の Sn 原子を格子置換位置に取り込むことも可能である [2]. 加えて, 固溶限(~4×10¹⁹ cm⁻³)を凌駕する Gaドープにも成功している[3]. 今回, Gaドープ Si_{1-x}Sn_x 薄膜で観測された巨大ゼーベック熱電能に関して報告する.

[実験方法] 表面清浄化した SOI(001) 基板(面内 2 軸 伸張歪:0,0.8,1.1%)上に,固体ソース分子線堆積法 を用いて,Gaドープ非晶質 Si_{1-x}Sn_x薄膜(Gaドープ量: 10²¹ cm⁻³,膜厚:50 nm)を室温形成した.RF スパッタリ ング法により SiO₂キャップ層(膜厚:10 nm)を室温形成 後,窒素雰囲気中で熱処理(*T*_a=300-500 °C,1 min)を 行い非晶質 Si_{1-x}Sn_x薄膜の結晶化を誘起した.

[実験結果]様々な試料のゼーベック係数を室温で測 定し, Hall 正孔濃度の関数として纏めた[Fig. 1]. 図中 の破線は p-Si bulk の計算値である. 一部の試料にお いて, p-Si bulk よりも 2.6~3.5 倍程度大きなゼーベック 係数が観測された.この理由を探るため,価電子帯端 スペクトルを硬 X 線光電子分光法(Spring-8/BL47XU, hv=7939 eV)により評価した. 同程度の Hall 正孔濃度 を有する試料(Fig. 1 中の sample A, B)の価電子帯端 スペクトルを Fig. 2 に示す. 各スペクトル 強度は Si 1s 内 殻準位のスペクトル強度の最大値で規格化している. 図中の破線は、各試料のHall 正孔濃度から推定したフ ェルミ準位である. Sample A は Si 基板とほぼ同じ価電 子帯端スペクトルの立ち上がりであるのに対し, Sample B では急峻化している. つまり, 巨大ゼーベック熱電能 の要因は、フェルミ準位における電子状態密度の勾配 が増大したためであると考えられる.



Fig. 1 Seebeck coefficient of the Ga-doped $Si_{1-x}Sn_x$ layers as a function of Hall hole concentration.



Fig. 2 Valence band spectra of sample A and B as shown in Fig. 1.

[謝辞] 歪み SOI 基板を提供していただいた東京大学・高木信一先生に御礼申し上げます.本研究の一部は, JST-CREST (No. JPMJCR19Q5)および文科省学際・国際的高度人材育成ライフイノベーションマテリアル共同研究プロジェクトの研究助成により実施されました.

[参考文献] [1] S. N. Khatami, et al., Appl. Phys. Rev. 6, 014015 (2016). [2] M. Kurosawa et al., APL 106, 171908 (2015); APL 111, 192106 (2017). [3] M. Kurosawa et al., JJAP 58, SAAD02 (2019).