

熱電素子応用を目指した GeSn 単結晶薄膜の熱物性評価

Thermophysical characterizations of GeSn epilayers aiming for thermoelectric devices

¹ 名大院工, ² 学振特別研究員(PD), ³ 名大エコトピア

○黒澤昌志^{1,2,a)}, 福田雅大¹, 高橋恒太¹, 坂下満男¹, 中塚理¹, 財満鎮明^{1,3}

¹ Graduate School of Engineering, Nagoya University, ² JSPS Research Fellow (PD),

³ EcoTopia Science Institute, Nagoya University

○M. Kurosawa^{1,2,a)}, M. Fukuda¹, K. Takahashi¹, M. Sakashita¹, O. Nakatsuka¹, and S. Zaima^{1,3}

^{a)} Email: kurosawa@alice.xtal.nagoya-u.ac.jp

[はじめに] 未利用廃熱量が多い低温度域(<200°C)のエネルギーハーベスティングを目指し、新たな熱電素子材料の開発が求められている[1]。材料開発の指針となる熱電変換素子の性能指標(Z)は、「 $Z \propto$ 電気伝導率/熱伝導率」の関係にある。つまり、高変換効率を達成するには、「キャリアの高速移動は許すが、熱伝導に寄与するフォノンをしっかり抑える」ことが求められる。我々は、GeSn が上記に適した材料になり得ると考えている。その理由は、(1)直接遷移型 GeSn (Sn 組成: 8%) の高いキャリア移動度($\sim 10^6$ cm²/Vs) [2]と、(2) Ge 母体中に配置した重い Sn 原子がフォノン散乱体になり得るとの予測にある。産総研・内田らにより Poly-GeSn (Sn 組成: 0-1%) の熱伝導率が報告されたが[3]、熱伝導率に与える Sn 組成の影響など GeSn 本来の熱物性は未だ明らかになっていない。上記背景のもと、本講演を通して GeSn 単結晶薄膜の熱物性を明らかにし、熱電変換素子への応用の可能性について議論する。

[実験方法] 本研究に使用した GeSn 単結晶薄膜(膜厚: 200-300 nm, Sn 組成: 0-12.3%)は、低温 MBE 法により Ge(001)基板上に形成した[4]。これら全ての試料について、GeSn 薄膜が Ge 基板上にエピタキシャル成長していることを X 線回折法で確認している。Ge_{1-x}Sn_x 薄膜の熱物性測定には、1 ps の時間分解能を有する「ピコ秒サーモリフレクタンス法(ピコサーム製 PicoTR)」を用いた[5,6]。

[実験結果] Ge および Ge_{0.955}Sn_{0.045} 単結晶薄膜のサーモリフレクタンス測定結果を Fig. 1(a)に示す。本測定では、Ge_{1-x}Sn_x 表面を Mo で覆った試料を準備した。pump laser (パルス幅: 0.5 ps) で Mo 表面を瞬間的に加熱し、Mo から Ge_{1-x}Sn_x 内部への熱拡散の様子を Mo の表面温度変化として計測する。つまり、Ge_{1-x}Sn_x の熱伝導率が小さければ、その分、Mo 表面の温度下降もゆるやかになる。熱拡散方程式に基づく理論フィッティング[7]により、Ge_{1-x}Sn_x の熱伝導率を算出し、Sn 組成の関数として Fig. 1(b)に纏めた。興味深いことに、Ge への 4% の Sn 導入で、熱伝導率は約 1/5 に低下 (23.6 $\Rightarrow$ 4.8 W/mK) し、その後 Sn 組成の増加に伴い 2.6 W/mK @ Sn=12.3% まで徐々に低下する。Ge への Sn 導入が熱伝導率抑制に効果があることを実証した重要な結果である。当日の講演では、ゼーベック係数測定結果も合わせて報告する。

[謝辞] ゼーベック係数測定にご協力頂いた名古屋大学・河本邦仁先生、万春磊先生および鶴田一樹氏、サーモリフレクタンス測定にご協力頂いた(株)ピコサーム・石川佳寿子博士に感謝いたします。

参考文献 [1]例えば、エネルギー東リサーチセンター, エネルギーハーベスティング, p.23 (2013). [2] J. D. Sau and M. L. Cohen, Phys. Rev. B **75**, 045208 (2007). [3] 内田紀行ら, 2014 秋応物(19p-A16-18). [4] T. Asano *et al.*, Thin Solid Films **557**, 159 (2014). [5] 八木貴志ら, 応用物理 **82**, 397 (2013). [6] ピコ秒サーモリフレクタンス測定装置の詳細は、<http://www.pico-therm.com/japanese/product/index.html> [7] T. Baba, Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 05EB04 (2009).

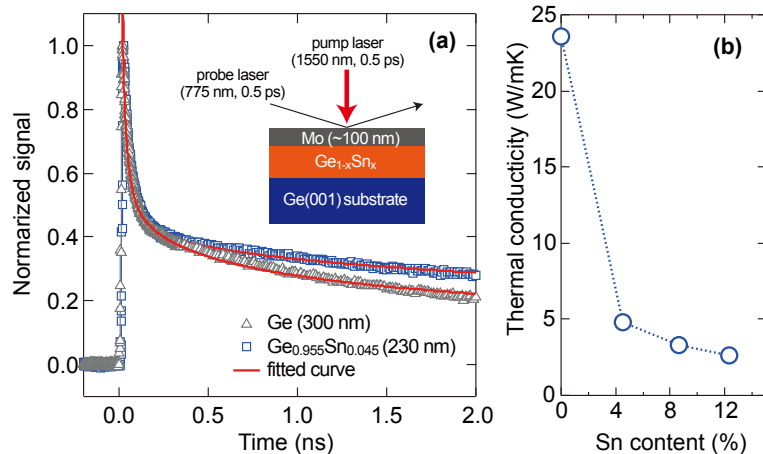


Fig. 1 (a) Thermoreflectance signal obtained from Ge and Ge_{0.955}Sn_{0.045} epilayers as a function of delay time of pump laser. (b) Thermal conductivity vs Sn content in GeSn epilayers. The thermal conductivities in (b) were determined by theoretical fitting based on heat diffusion equation, as shown in (a) by red solid lines.