

拡散剤を用いた固相成長 GeSn 薄膜の n 型伝導制御と熱電応用

N-type control of solid-phase-crystallized GeSn thin films using spin-on-glass technique and its thermoelectric application

小澤知輝¹, 今城利文¹, 末益崇¹, 都甲薫^{1,2} (1. 筑波大院 数理物質, 2. JST さきがけ)

°T. Ozawa¹, T. Imajo¹, T. Suemasu¹, and K. Toko^{1,2}

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

E-mail: s2020256@s.tsukuba.ac.jp

【はじめに】我々は絶縁基板上 Ge 固相成長において、加熱堆積により前駆体密度を制御することで、p 型 Ge 膜の高移動度化を実現した^[1]。また、同手法における微量 Sn 添加による移動度の向上も明らかにした^[2]。さらに、堆積中に n 型ドーパントを添加することで、低温多結晶 Ge 薄膜として最高の電子移動度も達成してきた^[3,4]。本研究では、リン添加スピンオンガラス(SOG(P))液を用いた簡便な手法での n 型伝導化と熱電応用を検討した。高い電子移動度を持つ n 型 GeSn 薄膜の形成に成功するとともに、高い出力因子を実証したので報告する。

【実験方法】石英ガラス基板上に、基板加熱(T_d : 125 °C)を行いながら 100 nm の非晶質 $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ 膜($x = 0-0.034$)を真空蒸着した後、 N_2 雰囲気中で熱処理(450 °C)することで固相成長を誘起した。その後、SOG(P)液を塗布し、熱処理(T_{DA} : 450–550 °C, t_{DA} : 1–150 h)により P の拡散・活性化を促した。各 T_{DA} において熱処理時間を変調し、電子密度 n を制御した。(Fig. 1)

【結果・考察】P 拡散後の $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ 薄膜は、いずれも n 型伝導を示した。 $x = 0$ について、導電率 σ とゼーベック係数 S は n に対してそれぞれ単調に増加、減少した(Fig. 2(a), (b))。この挙動は基礎物性に従う一般的な傾向である。出力因子 σS^2 は、 σ を反映して n の増加とともに増加し、室温において最大で $2100 \mu\text{W m}^{-1} \text{K}^{-2}$ に及んだ(Fig. 2(c))。 $x = 0$ の面直方向の熱伝導率を測定したところ $5.9 \text{ W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ であり、性能指数 ZT

は 0.11 と算出された。Ge の熱伝導率は Sn 添加により低減が可能であるため^[5], $x = 0$ において出力因子が最大となる条件($T_{DA} = 500 \text{ °C}$, $t_{DA} = 10 \text{ h}$)で $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ 薄膜について熱電特性を評価した。少量 Sn 添加による粒径拡大(移動度向上)を反映して $x = 0.012$ において σ は最大となった(Fig. 3(a))。 S は、Sn 添加により全組成で $x = 0$ と同等以上となった(Fig. 3(b))。 σS^2 は Sn 濃度に依存し、 $x = 0.012$ で最大 $2300 \mu\text{W m}^{-1} \text{K}^{-2}$ に及んだ(Fig. 3(c))。熱伝導率は評価中であるが、出力因子を考慮すると、Sn 添加による ZT の向上が期待される。

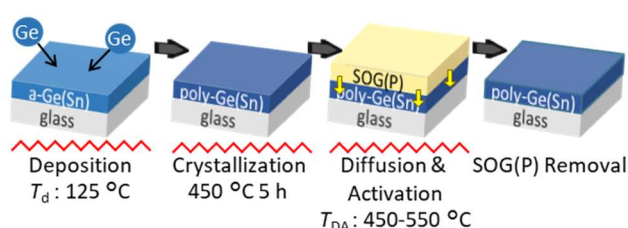


Fig. 1. Schematic of the sample preparation.

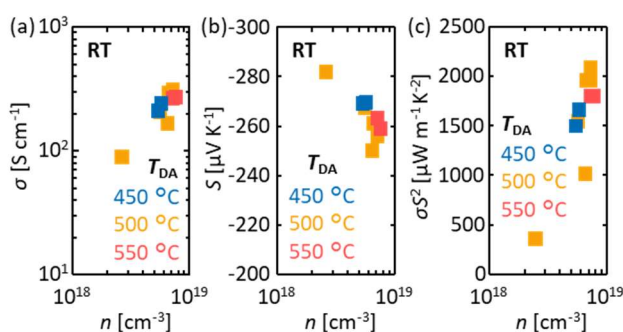


Fig. 2. Thermoelectric properties of the samples ($x=0$) as a function of electron concentration n in various diffusion temperature T_{DA} . (a) Electrical conductivity σ , (b) Seebeck coefficient S and (c) Power factor σS^2 .

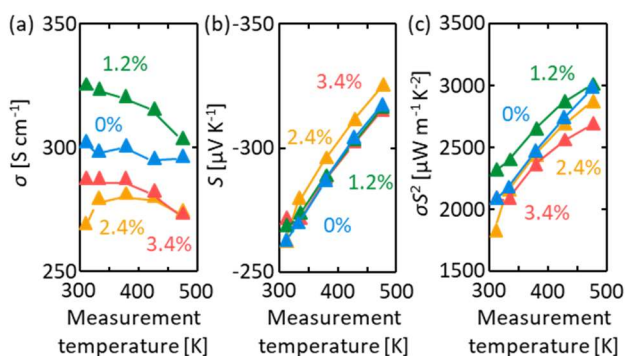


Fig. 3. Thermoelectric properties of the samples in various Sn concentration. (a) σ , (b) S and (c) σS^2 .

[1] K. Toko *et al.*, Sci. Rep. **7**, 16981 (2017). [2] K. Moto *et al.*, APL. **114**, 112110 (2019). [3] D. Takahara *et al.*, APL. **114**, 082105 (2019). [4] M. Saito *et al.*, Sci. Rep. **9**, 16558 (2019). [5] S. N. Khatami *et al.*, Phys. Rev. Appl. **6**, 014015 (2016).