

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：13801

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24651168

研究課題名(和文)単電子・スピndeバイスの高温動作を可能にするためのナノフリーザ基板の開発

研究課題名(英文)Development of nanofreezer substrate for realizing room-temperature operation of single-electron and spin devices

研究代表者

池田 浩也 (Ikeda, Hiroya)

静岡大学・電子工学研究所・准教授

研究者番号：00262882

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、量子効果デバイスを高温動作できるようにするために、熱電変換現象を利用した冷却基板(ナノフリーザ基板)の開発を目指して行われた。冷却機能の高効率化が期待できるシリコン・ゲルマニウム混合材料について、熱電変換の重要な物性値であるゼーベック係数(温度差を1℃与えたときに発生する熱起電力)を調べた。ゼーベック係数は、電子が寄与する成分と格子振動が寄与する成分があるが、格子振動による成分を決定する物的要因を明らかにした。また、実際のデバイスを作製するためのプロセス技術を提案し、その基礎データを収集した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have investigated a novel cooling substrate based on thermoelectrics, named "nanofreezer substrate", in order to operate the quantum effect devices at room temperature. For enhancing the cooling efficiency, Seebeck coefficient, which is thermoelectromotive force at a temperature difference of 1K and an important parameter determining the efficiency, of SiGe material was measured. The Seebeck coefficient usually consists of contributions from electrons and lattice vibration, and we clarified the physical factors determining the lattice-vibration component. In addition, we have proposed a new fabrication process for the actual refrigerator and confirmed its fundamental properties.

研究分野：半導体量子物性

キーワード：熱電変換 ベルチェ冷却 ナノワイヤ 量子効果デバイス

### 1. 研究開始当初の背景

現在の量子効果デバイスの研究は、室温動作に対する信頼性の確保が主要な課題とされている。我々も10年ほど単電子トランジスタの研究を行ってきたが、動作温度50 Kを越えるとその特性が消失してしまうなど、実用段階に達するにはまだ時間が必要である。

一方、熱電変換材料の分野では、ナノ構造の導入により変換効率を向上させる研究が進められてきた。しかし、熱電変換機器がバルクサイズの物体を対象とすることから、ナノ構造材料をどのような形でモジュール化すべきかが課題となっている。実際、我々もSi ナノ構造による熱電特性の向上を目的として研究を行ってきたが、実際のデバイス構造については模索中であつた。

以上のような背景ならびに研究経過に基づき、本研究では、ペルチェ効果により低温動作の必要なデバイス部分だけを局所的に冷却する『ナノフリーザ基板』を提案する。これにより、低温動作しか保証されていないデバイスを室温で動かすことが可能となる。

### 2. 研究の目的

本研究では、単電子・スピンドバイスの高温動作を実現するために、ペルチェ効果によりデバイス部分を局所的に冷却する『ナノフリーザ基板』の開発を目的とする。解決すべき課題は、冷却性能の確保と、構造設計・プロセス技術の確立の2点に集約される。そのため、本研究では以下の項目を中心に研究を進める。

- (1) 熱電材料として利用する、SiGe 結晶の作製とドーピング技術の開発
- (2) SiGe 混晶ナノワイヤ熱電対の熱電変換特性の解明
- (3) 高効率の放熱特性を持つ分子性絶縁体薄膜の創製
- (4) ナノフリーザ基板の試作と冷却性能の検証

### 3. 研究の方法

最初に、超高効率ナノワイヤペルチェアレイ構造の構築と、超高効率熱放出分子性極薄膜の探索をふたつの柱として、実験を行う。具体的には、SiGe 混晶ナノワイヤの熱電特性と分子性薄膜の熱放出特性、さらに分子性薄膜/ナノワイヤ界面の熱伝導特性を、測定と理論の両面から解明する。

この結果を基に、ナノフリーザ構造の作製と冷却特性評価に移行し、冷却機能の極限高性能化を目指す。

### 4. 研究成果

なかなか思うように研究が進まず、目的に列挙した項目の内、(1)と(2)について成果が得られたので、以下に概説する。

- (1) SiGe 混晶のゼーベック係数の解明  
SiGe 混晶膜にすることにより Si 単体と比

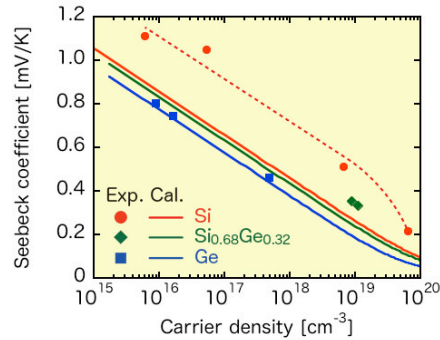


図1: p型 Si, Ge, および Si<sub>0.68</sub>Ge<sub>0.32</sub> 混晶のゼーベック係数のキャリア密度依存性。

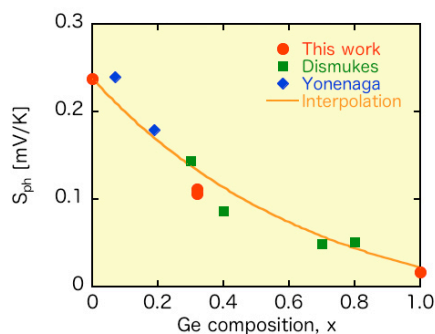


図2: Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> のゼーベック係数のフォノンドラッグ成分と Ge 組成の関係。

べて熱伝導率の低減が期待できるが、同時にゼーベック係数を保つことが必要となる。そのため、p型の Si, Ge, および Si<sub>0.68</sub>Ge<sub>0.32</sub> 混晶のゼーベック係数について調べた。図1は、Si, Ge, および Si<sub>0.68</sub>Ge<sub>0.32</sub> 多結晶混晶試料のゼーベック係数を、キャリア密度の関数としてプロットしたものである。図中の実線は、それぞれの材料に対応した、キャリアに起因するゼーベック係数の理論値である。この図からわかるように、Ge の実験値が理論値に近い値を示すのに対して、Si では実験値の方が理論値より大きい。これは、Si ではフォノンドラッグの効果が顕著であるが、Ge ではその寄与がほとんどないことを示している。この差を解析した結果、フォノンドラッグの効果がフォノン速度、フォノンの平均自由行程、およびフォノン散乱に起因したキャリア移動度により決定されることを見出した。

一方、Si<sub>0.68</sub>Ge<sub>0.32</sub> に対して得られたゼーベック係数は、Ge と Si のゼーベック係数の間に位置しており、理論値との差、すなわちフォノンドラッグの効果も Si と Ge の間にある。図2は、キャリア密度がおよそ 10<sup>16</sup>–10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup> を持つ Si, Ge, Si<sub>0.68</sub>Ge<sub>0.32</sub> に対するゼーベック係数のフォノンドラッグ成分と Ge 組成の関係をプロットしたものである。図中の実線

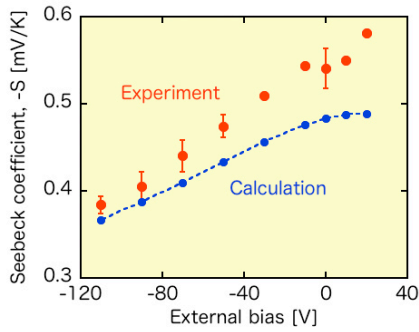


図3 : n 型 SOI 層のゼーベック係数のゲート電圧依存性.

は、フォノンドラッグ成分を支配する物性値である、フォノン速度、フォノンの平均自由行程、およびフォノン散乱に起因したキャリア移動度に関して、Si と Ge の値を内挿して計算した理論値である。また、幾つかの報告値についてもプロットした。

図2の結果から、SiGe のフォノンドラッグ成分が、Si と Ge の物性値を単純に内挿した値とよく一致していることがわかる。したがって、Si と Ge の物性パラメータを内挿することにより、SiGe 混晶のゼーベック係数が予測できることを見出した。この結果は、SiGe 混晶における合金散乱の効果が、ゼーベック係数のフォノンドラッグ効果ではほとんど効かないことを示唆している。

### (2) 極薄 SOI 層におけるゼーベック係数制御の実現

フェルミエネルギーを制御することによりゼーベック係数の増加を図るため、外部電圧による n 型 SOI (Si on insulator) 層のゼーベック係数の変化を調べた。その結果を図3に示す。図中の破線のデータは、シミュレーションによるキャリア分布の結果をもとに計算した理論値である。電圧をプラスに大きくするにしたがって、ゼーベック係数が大きくなっており、ゲート電圧での制御が可能であることが示された。また、正電圧が大きくなるにつれて実験値と理論値の差が大きくなることから、フォノンドラッグ効果が顕著になることを見出した。

極薄 SOI 層におけるフォノンドラッグの効果を調べるために、これまでの実験結果から理論的にフォノンドラッグに起因するゼーベック係数成分を抽出した。そのキャリア濃度依存性から、SOI 層におけるフォノンドラッグ成分に寄与する、フォノン輸送においてフォノン-フォノン散乱が支配的であることを明らかにした。

### (3) ナノワイヤを用いたサーモパイル作製プロセスの開発

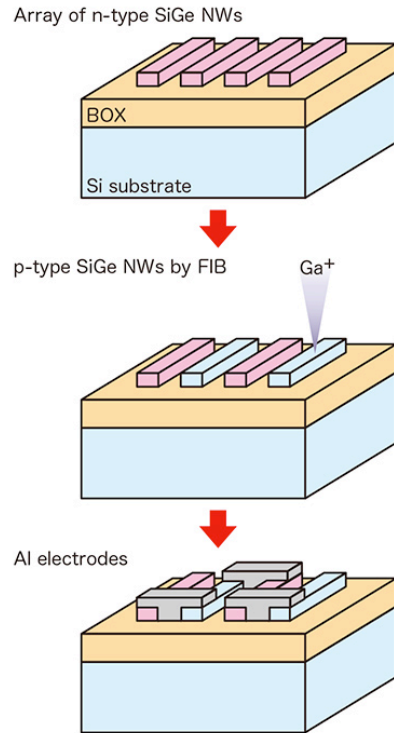


図4 : SiGe ナノワイヤサーモパイルの作製プロセス.

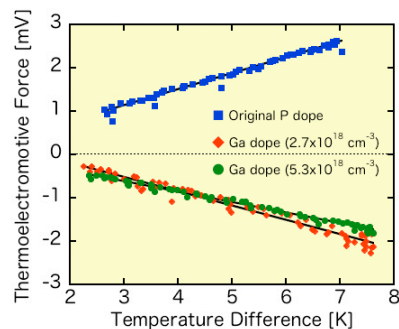


図5 : Ga イオン注入前と後の SOI 層に対する熱起電力の温度差依存性.

SiGe ナノワイヤのサーモパイル構造 (n 型と p 型をペアにした熱電対のアレイ構造) を作製する方法として、収束イオンビーム (FIB) による Ga イオン注入を利用するプロセスを提案する (図4)。まず、Si ナノワイヤで確認するために、P をドープした n 型 SOI 層に Ga イオン注入を行い、SOI 層のゼーベック係数の変化を調べた。図5は、Ga イオン注入前の試料と注入後の試料に対する、熱起電力の温度差依存性である。この結果から、Ga イオンを注入することにより、熱起電力の符号が反転することがわかる。したがって、Ga イオン注入により p 型 SOI 層が形成することが確認できた。また、この傾きから得られるゼーベック係数が、注入した Ga 濃度により制御できることも明らかにした。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 21 件)

- ① F. Salleh, T. Oda, Y. Suzuki, Y. Kamakura, H. Ikeda, Seebeck coefficient of SOI layer induced by phonon transport, *Makara J. Technol.*, in press. (査読有)
- ② V. Manimuthu, S. Yoshida, Y. Suzuki, F. Salleh, M. Arivanandhan, Y. Kamakura, Y. Hayakawa, H. Ikeda, Phonon-drag contribution to Seebeck coefficient of Ge-on-insulator substrate fabricated by wafer bonding process, *Makara J. Technol.*, in press. (査読有)
- ③ H. Ikeda, S. Yoshida, Y. Suzuki, V. Manimuthu, F. Salleh, F. Kuwahara, M. Shimomura, K. Murakami, Construction of a novel method of measuring thermal conductivity for nanostructures, *Makara J. Technol.*, in press. (査読有)
- ④ V. Manimuthu, M. Omprakash, Y. Suzuki, F. Salleh, M. Arivanandhan, Y. Kamakura, Y. Hayakawa, H. Ikeda, Seebeck coefficient of Ge-on-insulator layers fabricated by direct wafer bonding process, *Adv. Mater. Res.*, **1117** (2015) 94-97. (査読有)
- ⑤ H. Ikeda, T. Oda, Y. Suzuki, Y. Kamakura, F. Salleh, Study on phonon drag effect and phonon transport in thin Si-on-insulator layers, *Adv. Mater. Res.*, **1117** (2015) 86-89. (査読有)
- ⑥ M. Omprakash, M. Arivanandhan, T. Koyama, Y. Momose, H. Ikeda, H. Tatsuoka, D. Aswal, S. Bhattacharya, Y. Okano, T. Ozawa, Y. Inatomi, S. M. Babu, Y. Hayakawa, High power factor of Ga-doped compositionally homogeneous  $\text{Si}_{0.68}\text{Ge}_{0.32}$  bulk crystal grown by the vertical temperature gradient freezing method, *J. Cryst. Growth Design*, **15** (2015) 1380-1388. (査読有)  
[DOI:10.1021/cg501776h]
- ⑦ F. Salleh, T. Oda, Y. Suzuki, Y. Kamakura, H. Ikeda, Phonon drag effect on Seebeck coefficient of ultrathin P-doped Si-on-insulator layers, *Appl. Phys. Lett.*, **105** (2014) 102104-1-4. (査読有) [DOI:10.1063/1.4895470]
- ⑧ M. Omprakash, M. Arivanandhan, R. A. Kumar, H. Morii, T. Aoki, T. Koyama, Y. Momose, H. Ikeda, H. Tatsuoka, D. Aswal, S. Bhattacharya, Y. Okano, T. Ozawa, T. Ozawa, S. M. Babu, Y. Inatomi, Y. Hayakawa, Analysis of dissolution and growth process of SiGe alloy semiconductor based on penetrated x-ray intensities, *J. Alloys Compounds*, **590** (2014) 96-101. (査読有)  
[DOI:10.1016/j.jallcom.2013.12.093]
- ⑨ F. Salleh, Y. Suzuki, K. Miwa, H. Ikeda, Modulation of Seebeck coefficient of Si-on-insulator layer induced by bias-injected carriers, *Appl. Phys. Lett.*, **103** (2013) 062107-1-3. (査読有)  
[DOI:10.1063/1.4818152]
- ⑩ K. Miwa, F. Salleh, H. Ikeda, Development of Seebeck-coefficient measurement systems using Kelvin-probe force microscopy, *Makara J. Technol.*, **17** (2013) 17-20. (査読有)  
[DOI:10.7454/mst.v17i1.1922]
- ⑪ K. Miwa, F. Salleh, H. Ikeda, Improvement in measurement system of Seebeck coefficient by KFM, *J. Adv. Res. Phys.*, **3** (2012) 021205-1-4. (査読有)  
[http://stoner.phys.uaic.ro/jarp/index.php/jarp/article/view/115]
- ⑫ F. Salleh, K. Miwa, H. Ikeda, Variation of SOI Seebeck coefficient by applying an external bias, *J. Adv. Res. Phys.*, **3** (2012) 021207-1-4. (査読有)  
[http://stoner.phys.uaic.ro/jarp/index.php/jarp/article/view/117]
- ⑬ H. Ikeda, F. Salleh, Theoretical study on the stability of the single-electron-pump refrigerator with respect to thermal and dimensional fluctuations, *IEICE Trans. Electron.*, E95-C (2012) 924-927. (査読有)  
[DOI:10.1587/transele.E95.C.924]

[学会発表] (計 68 件)

- ① V. Manimuthu, Y. Hayakawa, H. Ikeda, Seebeck coefficient of polycrystalline SiGe and its phonon-drag contribution, 19th National Seminar on Crystal Growth, Chennai (India) 2015.3.12-14.
- ② H. Ikeda, Phonon drag effect on Seebeck coefficient in thin Si-on-insulator layer, 12th European Conference on Thermoelectrics, Madrid (Spain) 2014.9.24-26.
- ③ H. Ikeda, Study on phonon drag effect and phonon transport in thin Si-on-insulator layers, 13th International Conference on Global Research and Education, Riga (Latvia) 2014.9.10-12.
- ④ H. Ikeda, Seebeck-coefficient control of ultrathin SOI layers and its novel characterization technique, Candy (Sri Lanka) 2014.7.4-5. (招待講演)
- ⑤ 池田浩也, 極薄 SOI 膜のゼーベック係数制御とナノ構造熱電特性測定技術の構築, 奈良先端科学技術大学院大学 (金沢) 2014.6.13. (招待講演)
- ⑥ H. Ikeda, Seebeck-coefficient control of

Si nanostructures and its novel characterization technique, Las Vegas (USA) 2013.12.2-6. (招待講演)

⑦ H. Ikeda, Experimental and theoretical Seebeck coefficients of SOI layer including bias-injected carriers, 12th International Conference on Global Research and Education, Sofia (Bulgaria) 2013.9.23-27.

⑧ F. Salleh, H. Ikeda, Seebeck coefficient of SOI layer with spatially-distributed carriers b applied external bias, 32th International Conference on Thermoelectrics, Kobe International Conference Center (Kobe) 2013.6.30-7.4.

⑨ H. Ikeda, KFM evaluation of Seebeck coefficient in thin SOI layer, The 13th International Conference on Quality in Research, Yogyakarta (Indonesia) 2013.6.25-28.

⑩ H. Ikeda, Seebeck coefficient of Si nanostructures and its new characterization method, International Conference on Nanoscience and Nanotechnology, Chennai (India) 2013.3.18-20. (招待講演)

⑪ 池田浩也, シリコンナノ構造の熱電変換特性と測定技術の構築, 大阪大学 (大阪) 2013.3.13. (招待講演)

⑫ Y. Hayakawa, H. Ikeda, Growth of compositionally homogeneous  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  and  $\text{Mg}_2\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  crystals by novel method and their thermoelectric properties, International Workshop on Crystal Growth and Characterization of Advanced Materials and Devices, Chennai (India) 2012.12.16-19. (招待講演)

⑬ H. Ikeda, Thermoelectric properties of Si nanostructures and their characterization technique, International Workshop on Crystal Growth and Characterization of Advanced Materials and Devices, Chennai (India) 2012.12.16-19. (招待講演)

⑭ Y. Suzuki, M. Shimomura, H. Ikeda, Focused ion beam Ga implantation into P-doped SOI layer for fabrication of thermoelectric modules, Korean-Japanese Student Workshop, Busan (Korea) 2012.11.13-14.

⑮ 池田浩也, シリコンナノ構造の熱電変換特性と測定技術の構築, ナノワイヤ研究グループ研究会, 名古屋大学 (名古屋) 2012.11.9. (招待講演)

⑯ H. Ikeda, Si thermoelectric characteristics for nanowire-thermopile infrared photodetector, 2012 Symposium on Nanovision Technology, Taipei (Taiwan) 2012.10.19. (招待講演)

⑰ H. Ikeda, Construction of wafer

bonding technique for SiGe-on-insulator substrates applicable to SiGe nanowire thermopile, 11th International Conference on Global Research and Education, Budapest (Hungary) 2012.8.27-30.

⑱ H. Ikeda, Seebeck coefficient of thin SOI films measured by Kelvin-probe force microscopy, 31th International and 10th European Conference on Thermoelectrics, Aalborg (Denmark) 2012.7.9-12.

⑲ K. Miwa, H. Ikeda, Development of Seebeck-coefficient measurement system using Kelvin-probe force microscopy, The International Conference on Nano Electronics Research and Education, Bali (Indonesia) 2012.7.8-10.

[その他]

ホームページ:

<http://nonote.eng.shizuoka.ac.jp/~ikeda/lab/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

池田 浩也 (IKEDA, Hiroya)

静岡大学・電子工学研究所・准教授

研究者番号: 00262882

### (2) 研究分担者

早川 泰弘 (HAYAKAWA, Yasuhiro)

静岡大学・電子工学研究所・教授

研究者番号: 00115453

### (3) 研究分担者

下村 勝 (SHIMOMURA, Masaru)

静岡大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 20292279