

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	スパッタリング法によるMg ₂ Si基薄膜の作製とその熱電特性評価に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	片桐淳生
Author(English)	Atsuo Katagiri
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11956号, 授与年月日:2021年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:舟窪 浩,吉本 護,木村 好里,片瀬 貴義,松田 晃史
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11956号, Conferred date:2021/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	片桐 淳生		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	舟窪 浩	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)	松田 晃史	

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は、「スパッタリング法による Mg_2Si 基薄膜の作製とその熱電特性評価に関する研究」と題し、全 7 章から構成されている。

第 1 章「緒言」では、本研究の背景について述べている。 Mg_2Si は比較的良好な熱電特性を示し、密度が他の熱電材料と比較して低いだけでなく、豊富に存在する毒性の低い元素で構成されていることから、自動車や情報通信機器など、様々なデバイスへの適用が期待されていることを述べている。また、熱電性能の指標としては、無次元性能指数 ZT が挙げられ、その値が高いことが材料に要求されることを述べている。 Mg_2Si は添加物や、元素置換により導電型の制御が可能であることが報告されており、様々な組成探索が行われているものの、その作製条件は、必ずしも同じではなく、純粋に組成の効果を比較することが難しいことを指摘している。本研究は、薄膜を用いることで、作製条件を大きく変えずに組成の効果を明らかにするため、RF マグネトロンスパッタリング法を用いて絶縁体基板上に緻密な Mg_2Si 基薄膜を作製し熱電特性を評価することを目的としていることを述べている。

第 2 章「実験方法」では、 Mg_2Si 基薄膜の製膜方法と電気特性評価の内容について述べている。 Mg_2Si 基薄膜は、RF マグネトロンスパッタリング法によって製膜され、製膜条件の最適化のために製膜温度、製膜圧力のほか、基板とターゲット間の距離、製膜雰囲気、ターゲットとして使用した Mg ディスクと設置した Si チップ数から求まる Mg と Si の面積比などを検討したことを述べている。作製した薄膜の評価として、組成は XRF (蛍光 X 線分析)、結晶構造は XRD (X 線回折法) により測定している。さらに電気特性として、電気伝導度、ゼーベック係数、キャリア濃度、キャリア移動度の評価も実施したことを述べている。

第 3 章「絶縁体基板上への Mg_2Si 膜作製法の確立」では、面内方向の電気特性を行う目的で、絶縁体基板上への Mg_2Si 膜の作製条件の検討を行っている。Mg ディスク上に Si チップを配したターゲットから製膜を行う際に、種々のターゲットの表面積比 $\text{Si}/(\text{Si}+\text{Mg})$ での製膜の検討を行っている。その結果、幅広い表面積比で単相の Mg_2Si 膜を得ることができ、ターゲットの $\text{Si}/(\text{Si}+\text{Mg})$ 比の増加に伴い、 Mg_2Si の析出量が増加することを明らかにしている。これは、基板上に Mg を過剰に供給した条件では、Mg は Mg_2Si に比べ蒸気圧が高いことから、 Mg_2Si は製膜できるが、過剰の Mg は基板上から再蒸発するため、 Mg_2Si 単相が製膜できるためであると考察している。

第 4 章「 Mg_2Si 膜の配向制御法の確立」では、単結晶基板上への Mg_2Si エピタキシャル膜を製膜した結果について述べている。前章で得られた製膜条件を元に、種々の単結晶基板上への製膜を行った結果、(100)SiC 基板、(100) SrTiO_3 および (110) SrTiO_3 等の基板上では、(110)配向したエピタキシャル Mg_2Si 膜を得ている。一方 (001) Al_2O_3 基板上では、(111)配向のエピタキシャル Mg_2Si 膜が得られている。エピタキシャル膜について、TEM や X 線回折法による結晶構造評価評価を行うことで、エピタキシャル成長における格子整合性について考察を行っている。

第 5 章「 Mg_2Si 膜の電気特性評価」では、前章で作製した (001) Al_2O_3 基板上の (111)配向の Mg_2Si エピタキシャル膜と、(110)一軸配向 Mg_2Si 膜について、電気特性評価を行っている。その結果、製膜後 500°C で熱処理した膜は、 p 型の導電型を示し、従来の焼結体等の報告の n 型とは異なっていることを報告している。この導電型の違いは膜中の Mg の含有量に起因すると考察している。

第 6 章「Ca 添加による三元系 Ca-Mg-Si への拡張」では、Mg-Si 系からの組成拡張として、資源が豊富な Ca を加えた Ca-Mg-Si 系の検討を行っている。従来報告されている Ca-Mg-Si 相のうち、 CaMgSi 相は得られたものの、 $\text{Ca}_7\text{Mg}_{14}\text{Si}_{14}$ と $\text{Ca}_6\text{Mg}_{14}\text{Si}_{14}$ 相は確認されず、広い組成範囲で非晶質膜が得ている。膜の $\text{Ca}/(\text{Ca}+\text{Mg})=0.5$ の組成では、 $\text{Si}/(\text{Ca}+\text{Mg}+\text{Si})$ が 0.5-0.6 の範囲でパワーファクターの極大値が確認され、0.6-0.7 で導電型が変化することが確認されている。Ca-Mg-Si への組成拡張によって、特性向上と導電型の制御が達成できることを明らかにしている。

第 7 章「総括」では、本研究で得られた結果を総括し、今後の課題・展望について述べている。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	（工学）
学生氏名： Student's Name	片桐 淳生		指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	舟窪 浩	
			指導教員（副）： Academic Supervisor(sub)	松田 晃史	

要旨（英文 300 語程度）

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis entitled “A study on preparation of Mg₂Si-based films and their thermoelectric properties” is written in Japanese and composed of 7 chapters

First of all, in chapter1, the background of research is described. the character, requirement of conversion efficiency and explanation of previous research are provided as introduction.

In chapter 2, preparation method and considered parameter for preparation of Mg₂Si based film were described, in addition, characterization methods for electrical properties of prepared films were also described.

In chapter 3, preparation method for Mg₂Si single phase films on insulator was established. By taking advantage of higher vaporization pressure of Mg than the one of Si, Mg₂Si single phase film could be obtained under Mg-excess and high temperature condition. Furthermore, the process mechanism was also suggested.

In chapter 4, oriented Mg₂Si epitaxial films were obtained by adjusting preparation condition and considering the substrates. (110)-oriented epitaxial Mg₂Si films were obtained on (100)SiC substrate, (100)SiC epitaxial film and (111)SiC epitaxial film, (100)SrTiO₃ substrate and (110)SrTiO₃ substrate. Furthermore, (111)-oriented Mg₂Si epitaxial films were obtained on (001)Al₂O₃ substrates. The arrangement between Mg₂Si lattice and substrates or underlayers were investigated by in-plane, pole figure image with X-ray diffraction and TEM analysis.

In chapter 5, electrical properties such as electrical conductivity, Seebeck coefficients, carrier density and carrier mobility of (111)-oriented Mg₂Si epitaxial films were characterized and compared with one-axis oriented films and reported bulks.

In chapter 6, composition was expanded from Mg-Si binary system to the Ca-Mg-Si ternary system because enhancement of thermoelectric properties was expected in Ca-Mg-Si system by considering the result of chapter 4 and previous research about Ca-Si system. In ternary system, CaMgSi single phase and amorphous phase were obtained with wide composition range and their thermoelectric properties were characterized.

Finally, chapter 7 gives conclusions of the results and future works.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).