

Thermoelectric Characterization of InAs Nanowires

Doctoral Thesis

Author(s):

Mensch, Philipp Franz-Josef

Publication date:

2015

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010526730>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

DISS. ETH NO. 22714

*Thermoelectric
Characterization of InAs
Nanowires*

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH Zurich
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

PHILIPP FRANZ-JOSEF MENSCH

MSc. ETH Physics, ETH Zurich

born on *07.06.1986*

citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Andreas Schenk, examiner

Prof. Dr. Mathieu Luisier, Prof. Dr. Kornelius Nielsch and

Dr. Heike Riel, co-examiners

2015

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit den thermoelektrischen Eigenschaften von Indium Arsenid (InAs) Nanodrähten. Thermoelektrische Teststrukturen mit InAs Nanodrähten wurden im Rahmen dieser Dissertation hergestellt und detailliert charakterisiert. Die dimensionslose thermoelektrische Gütezahl $ZT = \sigma S^2 T / \lambda$ beinhaltet die elektrische Leitfähigkeit σ , den Seebeck-Koeffizienten S und die thermische Leitfähigkeit λ . Des Weiteren steht T für die Temperatur. Alle Materialparameter der thermoelektrischen Gütezahl wurden sorgfältig gemessen und analysiert. Insbesondere wurde ein erhöhter thermoelektrischer Leistungsfaktor σS^2 bei sehr dünnen, ein-dimensionalen Nanodrähten im Vergleich zu dickeren, drei-dimensionalen Nanodrähten zum ersten Mal im Rahmen dieser Arbeit gemessen. Darüberhinaus konnten mit Hilfe der thermoelektrischen Größen weitere Materialparameter wie Ladungsträgerkonzentration und Ladungsträgerbeweglichkeit bestimmt werden. In der Arbeit werden Design, Fabrikation und Charakterisierung der thermoelektrischen Teststrukturen präsentiert. Dabei wird der Schwerpunkt auf folgende Punkte gelegt:

- Experimentelle Methoden
- Thermische Leitfähigkeit von InAs Nanodrähten
- Thermoelektrische Eigenschaften von drei-dimensionalen InAs Nanodrähten
- Thermoelektrische Eigenschaften von ein-dimensionalen InAs Nanodrähten

Die thermische Leitfähigkeit von thermoelektrischen Materialien kann durch eine Verkleinerung der relevanten charakteristischen Längenskala im Material von Mikrometer auf Nanometer deutlich reduziert werden. Dies ist die am weitesten verbreitete Methode zur Erhöhung der thermoelektrischen Gütezahl in nano-strukturierten Materialien. Im Rahmen dieser Arbeit wird eine neue Methode zur Messung der thermischen Leitfähigkeit von halbleitenden Nanodrähten vorgestellt. Die Messmethode basiert auf der Jouleschen Erwärmung eines Nanodrahts auf Grund eines elektrischen Stroms. Die Gültigkeit der Methode wird mit der Messung von 50 nm dicken Silizium Nanodrähten gezeigt. Mit dieser Methode wurde eine thermische Leitfähigkeit von $\lambda = (25 \pm 5) \text{ W/mK}$ der Silizium Nanodrähte bei Raumtemperatur bestimmt, was sehr gut mit Literaturdaten zu ähnlichen Nanodrähten übereinstimmt, die mit einer anderen Methode gemessen wurden. Im Anschluss an die Messungen an Silizium Nanodrähten wurden InAs Nanodrähte vermessen. Der bestimmte Wert von $\lambda = (1.8 \pm 0.25) \text{ W/mK}$ entspricht einer mehr als zehn-fachen Verkleinerung der thermischen Leitfähigkeit gegenüber dem Wert von Bulk-InAs. Diese drastische Verringerung kann hauptsächlich auf zwei Effekte zurückgeführt werden. Die Dimension des Nanodrahts mit einem Durchmesser von $d = 70 \text{ nm}$ zwingt Phononen mit einer langen mittleren freien Weglänge zu Streuung an der Oberfläche. Sie können von daher nicht in vollem Umfang zum Wärmetransport beitragen. Des Weiteren ist in diesen Nanodrähten eine hohe Dichte von sogenannten Stapelfehlern, Änderungen in der Gitterstruktur von Wurtzit zu Zinkblende, vorhanden. Die Distanz zwischen einzelnen Stapelfehlern beträgt von einigen Nanometern bis einige zehn Nanometer. Phononen streuen an diesen Stapelfehlern, was wiederum die thermische Leitfähigkeit reduziert. Um einen methodischen Fehler der Leitfähigkeitsmessungen von InAs Nanodrähten abzuschätzen, wurden Finite-Elemente-Simulationen durchgeführt mit dem Ergebnis, dass mit der verwendeten Methode die thermische Leitfähigkeit von InAs Nanodrähten um ca. 7% unterschätzt wird. Der Hauptgrund sind sich aufheizende Kontakte und thermische Grenzflächenwiderstände, wodurch die Durchschnittstemperatur des Nanodrahts höher ist als gedacht.

Die Größen σ und S liefern nicht nur Informationen über die thermoelektrischen Eigenschaften eines Materials, sie können auch dazu genutzt werden, weitere Materialeigenschaften zu bestimmen. Um die

feldabhängige Änderung der Ladungsträgerkonzentration zu untersuchen, wurden 30 nm dicke InAs Nanodrähte in Abhängigkeit von Gatespannung und Temperatur gemessen. Diese InAs Nanodrähte haben einen thermoelektrischen Leistungsfaktor von $\sigma S^2 = 0.5 \text{ W/mK}^2$. Dieser ist dreimal kleiner als bei Bulk-InAs. Aus den Feldeffekt- und Leitfähigkeitsmessungen lässt sich eine Ladungsträgerbeweglichkeit von $\mu = 1200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei einer Ladungsträgerkonzentration im Bereich von $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bis $3.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bestimmen. Die Beweglichkeit ist mehr als zehnmal kleiner als der in Bulk-InAs gemessene Wert. Die Ladungsträgerkonzentration kann mit Hilfe der angelegten Gate-Spannung und einer elektrischen Kapazität, die mit Hilfe eines Modells bestimmt wird, abgeschätzt werden. Genauere Werte für die Ladungsträger können mit Hilfe der Boltzmann Transport Theorie erhalten werden. Dafür muss man den Seebeck-Koeffizienten in Abhängigkeit von der Gatespannung messen und kann daraus das Fermineau bestimmen. Mit Hilfe des Gates kann das Fermineau von $E_F = 0.1 \text{ eV}$ oberhalb der Leitungsbandkante auf $E_F = 0.2 \text{ eV}$ angehoben werden. Das Fermineau in Abhängigkeit von der Gatespannung erlaubt die Bestimmung der Ladungsträgerkonzentration. Des Weiteren kann mit Messungen der elektrischen Leitfähigkeit eine Ladungsträgerbeweglichkeit ausgerechnet werden. Sie beträgt im Falle der InAs Nanodrähte $\mu \approx 2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei Raumtemperatur. Der Unterschied zu dem vorherigen, niedrigeren Wert sind Oberflächenladungen. Bei der Methode mit der Boltzmann Transport Theorie spielen Oberflächenladungen keine Rolle, während bei Berechnung der Ladungsträgerkonzentration auf Grund von Oberflächenladungen überschätzt und dadurch die Beweglichkeit der Ladungsträger unterschätzt wird. Darüberhinaus wird die Abhängigkeit des Seebeck-Koeffizienten von der Ladungsträgerkonzentration dazu genutzt die Dotierungskonzentration in chemisch dotierten InAs Nanodrähten zu bestimmen. Dotierungskonzentrationen zwischen $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ und dazugehörige Beweglichkeiten zwischen $545 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $332 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ wurden ermittelt. Auf Grund der hohen Dichte von ionisierten Dotieratomen ist die Ladungsträgerbeweglichkeit wesentlich geringer als in den vorherigen Nanodrähten.

Um hohe Werte für die thermoelektrische Gütezahl zu erhalten ist

es nicht ausreichend, sich auf eine Reduktion der thermischen Leitfähigkeit zu beschränken, auch der thermoelektrische Leistungsfaktor muss gleichzeitig erhöht werden. Das ist bis jetzt jedoch noch nicht gelungen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden 20 nm dicke, ein-dimensionale InAs Nanodrähte vermessen. Sie haben einen thermoelektrischen Leistungsfaktor von 1.7 W/mK^2 bei Raumtemperatur. Dies entspricht dem Wert für Bulk-InAs, bei jedoch gleichzeitig deutlich kürzerer mittlerer freier Weglänge der Elektronen im Nanodraht. Um zu überprüfen ob diese Nanodrähte wirklich ein-dimensionales Verhalten zeigen, wurden sie auch bei tieferen Temperaturen um die 100 K vermessen. Im elektrischen Leitwert wurden in Abhängigkeit von der Gatespannung Stufen beobachtet, welche als klarer Hinweis für ein-dimensionalen elektrischen Transport angesehen werden können. Die Höhe der Stufen weist eine Abhängigkeit von der Länge des Segments des Nanodrahts auf. Ein maximaler Wert von $0.73 G_0$ wurde für die erste Stufe gemessen. Daraus kann man schliessen, dass nicht alle Ladungsträger das Segment ungestreut passieren. Aus der Messung von verschiedenen Segmenten eines Nanodrahts kann eine mittlere freie Weglänge von $(125 \pm 15) \text{ nm}$ bestimmt werden. Der Seebeck-Koeffizient dieser Nanodrähte zeigt in Abhängigkeit von der Gatespannung ein nicht-monotones Verhalten. Dies wird in drei-dimensionalen Materialien nicht beobachtet. Das Verhalten des elektrischen Leitwerts und des Seebeck-Koeffizienten wurden durch Berechnungen der physikalischen Grössen mittels Boltzmann Transport Theorie qualitativ bestätigt.

Abstract

In this thesis, the thermoelectric properties of indium arsenide (InAs) nanowires (NWs) are investigated. Thermoelectric test structures have been fabricated and InAs nanowires have been characterized in detail. The three material parameters electrical conductivity σ , Seebeck coefficient S and thermal conductivity λ together with the temperature T determine the thermoelectric figure of merit of $ZT = \sigma S^2 T / \lambda$. These parameters have been analyzed carefully. In particular, an enhanced thermal power factor σS^2 at room temperature for one-dimensionally conducting InAs nanowires compared to thicker, three-dimensional nanowires is observed for the first time in this thesis. Furthermore, the thermoelectric quantities are used to extract additional material parameters of the InAs nanowires such as carrier concentration and carrier mobility. In this thesis, the design, fabrication and characterization of InAs nanowire thermoelectric test structures is presented and discussed with the focus on:

- Experimental Details
- Thermal conductivity of InAs NWs
- Thermoelectric Properties of Three-Dimensional InAs Nanowires
- Thermoelectric Properties of One-Dimensional InAs Nanowires.

By decreasing the feature size of a thermoelectric material from the micrometer scale to the nano-meter scale, the thermal conductivity can be decreased. This is the most common way to enhance the figure of merit in nano-structured materials. A new way of measuring the thermal conductivity of semiconducting nanowires has been

introduced in this thesis. The method is based on self-heating of the nanowire due to an electric current. The validity of the method is shown with 50 nm thick silicon nanowires. The thermal conductivity determined is $\lambda = (25 \pm 5) \text{ W/mK}$ at room temperature which is in good agreement with results for similarly thick silicon nanowires which have been published previously and which have been measured with another method. Subsequently, InAs nanowires are characterized with the same method. The value of the thermal conductivity at room temperature of these nanowires is determined to be $\lambda = (1.8 \pm 0.25) \text{ W/mK}$, a more than ten-fold reduction compared to bulk InAs. This low value of the thermal conductivity can be attributed to two effects. First, the diameter of the nanowire ($d = 70 \text{ nm}$) forces phonons with a mean free path longer than 70 nm to scatter at the surface of the nanowire. Thus, they cannot contribute to the thermal conductivity as they do in bulk. Second, there is a high density of stacking faults present perpendicular to the long axis. The distance between the stacking faults varies from a few nanometers to tens of nanometers. At a stacking fault, the crystal orientation changes which causes a phonon scattering. This effect reduces the thermal conductivity further. Finite element simulations are used to estimate the error due to the measurement method. The thermal conductivity of the InAs nanowires is under-estimated by maximum 7%.

Measurements of the thermoelectric quantities σ and S do not only give information about the suitability of a material for thermoelectrics, they also allow to extract additional material parameters. 30 nm thick InAs nanowires are investigated in dependence of a back gate and temperature. The maximum thermoelectric power factor σS^2 of these nanowire is $0.5 \times 10^{-3} \text{ W/mK}^2$, a factor of three lower than in bulk InAs. Field-effect transistor and conductivity measurements yield a carrier mobility of $\mu = 1200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ within a range of carrier concentration of $(2 \times 10^{17} - 3.5 \times 10^{18}) \text{ cm}^{-3}$. This mobility value is $\sim 10 \times$ lower than the mobility in bulk InAs. The carrier concentration was determined from the geometrical capacitance and the gate voltage applied. Gate-dependent measurements of the Seebeck coefficient allow to extract the Fermi level for each gate voltage by using Boltzmann transport theory. The Fermi level can be shifted from $E_F = 0.1 \text{ eV}$ with respect to the conduction band edge to $E_F = 0.2 \text{ eV}$. This finding can be used to calculate the charge carrier concentration.

Furthermore, the Boltzmann transport formalism allows to extract a charge carrier mobility of $\mu \approx 2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ at room temperature. The difference between n extracted with this method and n extracted from the geometric capacitance can be used to estimate a density of surface charges of $\sim (0.1 - 3.4) \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{eV}^{-1}$. The surface states are also responsible for the two different values of the mobility presented, because they lead to an overestimation of free carrier using the capacitance to extract the carrier concentration, which results in a lower mobility.

The dependence of the Seebeck coefficient on the carrier concentration is used to extract the doping concentration and the mobility of *in situ* doped InAs nanowires. Doping levels between $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ and $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ and mobilities between $545 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ and $332 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ are determined. The lower mobility compared to the previous nanowires can be attributed to the high density of ionized donors in these NWs in addition to the surface charges.

In order to obtain high values for ZT , it is not sufficient to reduce the thermal conductivity to values as low as possible; σS^2 has to be increased, too. One-dimensional conductors are predicted to have an enhanced thermoelectric power factor. However, this has not been observed experimentally before. 20 nm thick InAs nanowires have been fabricated and investigated. They show a maximum thermoelectric power factor of $1.7 \times 10^{-3} \text{ W/mK}^2$ at room temperature, which is the same level as for bulk InAs in spite of the much shorter mean free path of the electrons. To check whether the nanowires are truly one-dimensional, they have been investigated at lower temperatures around $T = 100 \text{ K}$. Steps in the electrical conductance are observed in dependence on the gate voltage which is a clear sign for one-dimensional transport. A dependence of the height of the conductance plateau on the length of the nanowire segment is observed, with a maximum value of $0.73 G_0$ for the first plateau. A value smaller than G_0 for the first plateau signifies that not all electrons pass the segment in a ballistic way, some electrons scatter during the transport. From these measurements, an electron mean free path of $(125 \pm 15) \text{ nm}$ can be extracted. Furthermore, the Seebeck coefficient shows a non-monotonous behavior at these temperature which is not expected in a three-dimensional material. Both effects have been reproduced

qualitatively by calculating σ and S with a one-dimensional density of states with the Boltzmann transport formalism.