

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：32601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2018～2019

課題番号：18H05896・19K21071

研究課題名（和文）貼付型汎用熱伝導率計測デバイスの実現

研究課題名（英文）Development of Nano-scale thermal conductivity measurement devices

研究代表者

柏木 誠（KASHIWAGI, Makoto）

青山学院大学・理工学部・助教

研究者番号：70825421

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,300,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究では、3 法を拡張し、高分子ナノシートを基板として用いた貼付型熱伝導率計測デバイスの提案とその実証実験を行った。デバイスは、フォトリソグラフィを用い、100nmオーダのエラストマー薄膜上に金属細線パターンを形成することで作製した。得られた貼付型熱伝導率計測デバイスは支持層から剥離しても自立しており、かつ金属配線パターンの抵抗が変化しないことが確認できた。さらに、作製したデバイスを熱酸化により作製したSiO₂薄膜に対して貼付し、熱伝導率計測を行った結果、1.0 [W m⁻¹ K⁻¹]という値を示し、本提案デバイスで薄膜の熱伝導率計測が可能であることが確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により実現した貼付型熱伝導率計測デバイスによれば、これまで測定が困難であった有機薄膜等の熱伝導率を簡便に計測・評価できる。この計測・評価は、薄膜の厚さ方向のみならず、面内方向に対しても可能であり、高い汎用性と実用性を有している。さらに、本デバイスを用いれば、これまでほぼ不可能であった非破壊での熱伝導率計測も可能であり、生体材料のその場計測など、幅広い応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：We proposed thermal conductivity measurement device which can measured nano, micro scale materials by extending 3-omega method. Specifically, we fabricated metal micro wire on an elastomeric ultra-thin film (nanosheet) with the thickness of several hundred nanometers by using photolithography. We confirmed that the electrical resistivity of metal micro wire formed on the elastomeric nanosheet was not changed even if the nanosheet was peeled off from a supporting layer, resulting in a free-standing state. The result showed that fabricated device can measure thermal conductivity by attaching measurement sample.

研究分野：伝熱工学

キーワード：熱物性計測 ナノ・マイクロスケール熱物性

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、MEMS 加工プロセスなどナノ・マイクロ加工技術の発達による材料のナノ・マイクロ構造化が進むに伴って、ナノ・マイクロ構造材料の物性に注目が集まっている。特に、ナノ・マイクロ構造材料の熱伝導率は、エネルギー輸送の観点から重要であるため、その評価は重要であり、その評価技術が求められている。加えて、極薄膜構造等においては、構造によっては面内方向と面直方向で物性が異なる場合も多いため、異方性を測定・評価できる技術が強く求められている。一方で、熱伝導率は、測定対象内部での熱拡散をモニタすることで計測されるが、ナノ・マイクロスケールでの熱拡散を捉えるには高い時間的または空間的分解能が求められることから難しく、ナノ・マイクロ構造材料の熱伝導率計測はその手段が限定的である。

一方で、3 ω 法は材料選択性が低く、計測可能な材料が限られてしまう。これは、3 ω 法では、図 1 に示すようなヒータと温度センサを兼ねた金属配線パターンを MEMS 加工技術により作製する必要があるためである。このため、有機半導体材料のようなリソグラフィなどの MEMS 加工プロセスへの耐性が低い材料は計測が困難となる。本研究では、図 2 に示すような高分子自立薄膜に金属配線パターンを形成することで貼付型熱伝導率測定デバイスとし、それをサンプルに貼り付けることで熱伝導率を計測できれば、サンプルに対する MEMS 加工が必要なくなるため、材料の選択性が大きく広がると考えられる。ここで、デバイスをサンプルに貼り付ける際にグリス等の接着剤を用いると、その接着剤層が熱抵抗となるために測定精度が低下するだけでなく、入力した熱エネルギーが接着剤層を貫通しなければならないために、測定が困難となりえる。一方で、数百 nm の高分子自立極薄膜を、静電引力やファンデルワールス力を利用することで、グリス等を使用せずに貼付可能な技術が研究されている。この技術を用いれば、前述のような測定誤差や測定の困難さといった問題が解決でき、汎用性の高い革新的熱伝導率計測手法を実現できると考えられる。

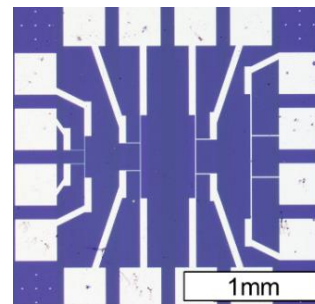


図 1 3 ω 法による熱伝導率測定のための金属配線パターン

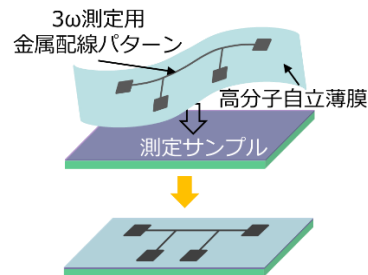


図 2 貼付型熱伝導率測定デバイスとその使用方法の概念図

表 1 熱伝導率測定方法の比較

測定手法名	パルス光加熱サーモリフレクタンス法 [2]	MEMS デバイスを用いた定常法 [3]	3 ω 法
異方性 (面内・面直) 計測	○	×	○
材料選択性	△	×	×
前処理・前加工の簡便性	×	×	×
計測の簡便性	×	×	○

2. 研究の目的

以上を踏まえ、本研究では、幅広い材料や形状のナノ・マイクロ構造材料の熱伝導率を簡便に測定可能な手法の実現を目的とする。具体的な手法としては、簡便・高精度計測手法として確立されている 3 ω 法を拡張し、その金属配線パターンを高分子自立極薄膜上に形成することで貼付け計測可能な熱伝導率測定デバイスとすることで、幅広いナノ・マイクロ構造材料の熱伝導率計測可能な手法の実現を目指す。

3. 研究の方法

3. 1 デバイス作製手法

本研究では、SBS (Styrene-Butadiene-Styrene block copolymer) を母材とするナノシートを基板として用いた。ここで、100 nm オーダのナノシートは、それ単体では自己凝集してしまい、金属配線を形成することが難しい。したがって、本研究では、サポート層として PET フィルムを用いた。さらに PET フィルムと SBS ナノシートの間に、水溶性である PVA 膜を形成し、多層構造とすることで、水に浸けるだけで SBS ナノシートを PET フィルムから容易に剥離することを可能とした。[Journal of Materials Chemistry C, 5 (2018), 1321-1327.]

また、3 ω 法で用いる金属配線パターンについては、フォトリソグラフィを用いた。より具体的な手順としては、まず、SBS ナノシート層上に真空蒸着により、200nm の厚さで銅を蒸着した。さらに、銅薄膜上にレジストを塗布し、フォトリソグラフィにより金属配線パターンを形成し、

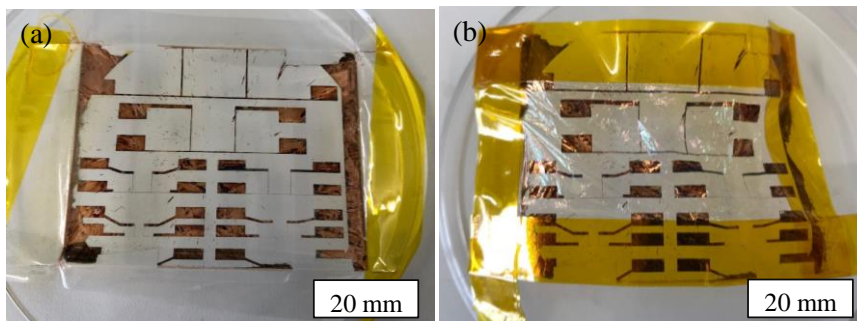


図3 作製した貼付型熱伝導率測定デバイス

混酸 Cu により銅をエッチングすることで、配線パターンを得た。実際に作製したデバイスの外観を図 3 に示す。図 3(a)は PET フィルムから剥離する前の貼付型熱伝導率測定デバイス、図 3(b)は剥離後のデバイスの外観をそれぞれ示している。本デバイスでは、全配線パターンの抵抗値がおよそ 10Ω となるように設計したが、作製したデバイスの抵抗値は約2.5倍の 25.5Ω となった。抵抗値は設計値よりも上昇してしましたが、熱伝導率測定が可能な範囲内となっている。また、このデバイスを温水に浸け、PET フィルムから剥離した結果、図 3(b)に示すように、SBS ナノシートの自己収縮に伴ってシワが生じてしまった。しかしながら、金属配線パターンの剥離などは生じず、さらには、その抵抗値についてはほとんど変化しないことが確認できた。

3. 2 熱伝導率の計測

前項で作製した貼付型熱伝導率計測デバイスを用いて、Si 基板上に熱酸化により形成した 600nm の SiO_2 薄膜の熱伝導率計測を試みた。測定的手法としては、薄膜の熱伝導率計測に用いられる最も一般的な手法である差分式 3ω 法を用いた。差分式 3ω 法とは、図 4 に示すように、基板のみのリファレンスと、同じ基板上に測定対象となる薄膜材料を形成したサンプルとをそれぞれ計測し、その差分から熱伝導率を計測する手法である。測定値からの熱伝導率の算出には以下の式を用いる。

$$\kappa = \frac{Pd_f}{2b[\Delta T(\omega)_s - \Delta T(\omega)_{\text{ref}}]}$$

ここで、 P は入力電力、 d_f はサンプル薄膜の膜厚、 b は測定に使用した金属細線パターンの最線幅、 ΔT は細線の上昇温度である。

本実験の計測結果を図 5 に示す。計測結果としては、およそ $1.0 [\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}]$ となった。 SiO_2 の熱伝導率は $1.34 [\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}]$ と報告されている [J. Appl. Phys., 91, 9772 (2002).]。この結果と比較すると、若干低くなった。この原因としては、SBS ナノシートの熱抵抗、または SBS ナノシートとサンプルとの貼付界面での熱抵抗が考えられる。ここで、 3ω 法の熱浸透深さを考えると、今回の計測周波数域においては、 μm オーダとなる。したがって、熱伝導率を過小評価した原因は、デバイスとサンプルとの貼付界面の熱抵抗であると考えられる。

4. 研究成果

本研究では、高分子ナノシートを基板とした 3ω 法に基づく貼付型熱伝導率測定デバイスの提案とその実証実験をおこなった。デバイスの作製については、フォトリソグラフィを利用して金属配線パターンを形成可能であることを確認した。本実験ではハンドリングを考慮し、 mm オーダサイズのデバイスを作製したが、フォトリソグラフィが利用できるのであれば、より小さなサイズのデバイスも作製可能であり、かつ線幅の細い配線パターンも作製可能である。これは、本デバイスを用いて熱伝導率の異方性計測が可能であることを示唆している。

熱伝導率の計測可能性については、貼付界面での界面熱抵抗により熱伝導率を過小評価する傾向が見られたが、計測値は概ね文献値とも一致しており、熱伝導率が計測可能であることが確認できた。

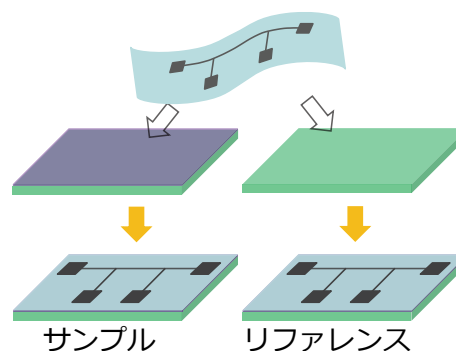


図4 差分式 3ω 法の概略図

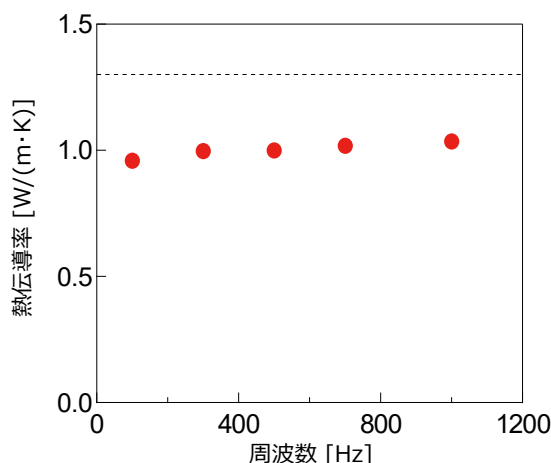


図5 SiO_2 薄膜の熱伝導率計測結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 柏木誠, 橋口大輝, 藤枝俊宣, 岩瀬英治
2. 発表標題 高分子ナノシートを用いた貼付型ナノスケール熱伝導率計測デバイス
3. 学会等名 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木優津希, 山下雄一郎, 八木貴志, 賈軍軍, 柏木誠, 小口有希, 竹歳尚之, 重里有三
2. 発表標題 -MoO ₃ 薄膜の積層方向熱伝導率におけるサイズ効果の検討
3. 学会等名 第40回日本熱物性シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青木優津希, 山下雄一郎, 八木貴志, 賈軍軍, 柏木誠, 竹歳尚之, 小口有希, 重里有三
2. 発表標題 反応性スパッタにより作製した -MoO ₃ 薄膜の熱物性解析
3. 学会等名 第86回研究会（日本学術振興会第166委員会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Aoki, Y. Yamashita, T. Yagi, J. Jia, M. Kashiwagi, Y. Oguchi, N. Taketoshi, Y. Shigesato
2. 発表標題 Study of MoO ₃ thin film with low thermal conductivity
3. 学会等名 Materials research Meeting 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----