研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 6 年 6 月 2 1 日現在 機関番号: 14301 研究種目: 基盤研究(B)(一般) 研究期間: 2021~2023 課題番号: 21H01261 研究課題名(和文)ナノギャップの熱輸送計測ー放射から熱伝導への遷移領域の解明ー 研究課題名(英文)Heat Transfer Measurement on Nanogap -Investigation of Transition from Radiation to Heat Conduction 研究代表者 土屋 智由 (Tsuchiya, Toshiyuki) 京都大学・工学研究科・教授 研究者番号:60378792 交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文):本研究ではMEMSデバイスを用い、ナノスケールの空間において伝熱が放射から熱伝導 に遷移する領域の実験的測定に取り組みました。このデバイスは面方位(110)のSOIウエハのデバイス層(厚さ5 μm)に構造を作製し、外部アクチュエータによる荷重印加により単結晶シリコンの(111)面で構成する数μm角 の平行平滑なナノギャップを創製しました。静電アクチュエータと変位センサで数nm以下の分解能でギャップ間 隔を制御することで、カシミール力によるプルインを観察、また、ギャップ間の温度差を顕微ラマン分光やサー モリフレクタンス法を用いて最高0.1Kの温度分解能で計測することに成功しました。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究で実現した数μm角の面積を有するギャップにおいて間隔10nm以下で発生するカシミール力によるプルイ ンを観察できるほどに平滑なナノギャップを作製した例はなく、学術的意義は高い。熱輸送や電界電子放出など のナノ空間における物理現象の計測に応用することが期待され、今後の使用が期待される。 また、これらの技術を用いて、創製したナノギャップの伝熱測定に顕微ラマン分光、サーモリフレクタンスによる精密な局所温度測定を行い、固体接触面における伝熱現象という基本的でありながらいまだに明らかでない現 象の解明が期待され、さらには様々な機械・構造における熱エネルギーの効率的な利用への応用展開も望まれ る。

研究成果の概要(英文): In this study, a MEMS device was developed to experimentally measure the transition region from radiation heat transfer to heat conduction using nanogap. The device was fabricated on a device layer (5 micrometer thick) of a SOI wafer with a surface orientation of 110), and a few micrometer square parallel smooth nanogap composed of single crystal silicon (111) planes was created by applying a load using an external actuator. By controlling the gap spacing with a resolution of less than a few nm using electrostatic actuators and displacement sensors, we have successfully observed pull-in due to Casimir forces and measured the temperature difference between the gaps with a temperature resolution of up to 0.1 K using micro-Raman spectroscopy and thermo-reflectance techniques.

研究分野:ナノ・マイクロシステム工学

キーワード:ナノギャップ ス法 へき開 熱放射 カシミール力 MEMS 単結晶シリコン 顕微ラマン分光 サーモリフレクタン

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1.研究開始当初の背景

(1)背景

伝熱とは温度差を駆動力としてエネルギーが移動する現象であり、固体では熱伝導が、真空で は放射が支配的である。そして接触させた2つの固体間の伝熱制御はエネルギーの効率的利用 において重要である。効率的な固体間の熱エネルギー輸送には、接触面における熱伝導特性の利 用は無論のこと熱伝導に寄与する伝熱面積を大きくすることが必要であるが、実際には表面の 粗さやうねりによって理想の熱輸送効率の実現には困難がある。人々は日常生活で熱をよく伝 えるためには物体と物体を密着させることが必要であると知っていて、そのように工夫をする のであるが、物体の表面は平滑な平面であることはまれで完全な接触を実現することは難しい ともわかっている。一方で、直感的に「隙間」がなければ熱は十分に伝わるとも理解していて、 これは固体の表面が隙間なく完全に接触していると信じている。このように、固体接触面におけ る伝熱現象という基本的な現象でありながら、実はサブミクロンスケールでの現象の理解、現象 の解明はほとんど出来ていない。

近年、ナノスケールの空間における熱などのエネルギー輸送に関する研究が広く行われているが、点と面での測定が多く、しかも測定対象の面積が小さい、あるいは面が広い場合はギャップが100 nm 程度までの測定に限られており、大面積 (μm 角以上)で狭い(10 nm 以下)の測定はほとんど行われていない。我々はこれまでに nm オーダの空間の熱放射を計測することを目的として、平行平滑な表面をマイクロスケールの MEMS 構造体で製作し 100 nm 以下のギャップにおける熱放射を断熱の観点で測定してきた。しかし、高温側と低温側(室温)で 90K 程度の温度差を与え、最高 10 μN (面圧で約 0.4 MPa)の力を加えて密着させたつもりでも温度差が 80~70K 程度に維持された。当初、接触を基準位置として扱い、そこでは温度差がほとんどなくなると想像していたのとは全く異なり、熱が伝わりにくい現象を観測した。

(2)本研究における学術的な問い

上記の現象は接触=熱が伝わりやすいという常識を覆すものである。しかし、印加した圧力からヘルツの接触理論で接触面積を求め、これを伝熱面積として計算するとその熱伝導は実験値より小さく、他方、接触していない面が間隔数 nm と仮定し、図1における近接場熱放射領域で近似するとよく一致したことから、伝熱が空隙

の熱放射に支配されていることが推測された。 このことから我々は次のような疑問を持った、 「物体同士を接触させたときの熱伝導と思わ れていた現象は本当に熱伝導だったのかそれ とも熱放射なのか、その境目はどこにあるの か」。本研究ではマイクロスケールの面積を持 った平滑な平面間での熱輸送を精密に計測す ることによって上記の疑問に答えようという もので、ナノスケールの熱輸送の計測によって マクロの伝熱現象の理解を深めるものである。



2.研究の目的

本研究では厚み数~数10µmの単結晶シリコンに製作した微小電気機械システム(MEMS)デ バイス上でへき開破壊によって創製した原子レベルで平滑で対向面が一対一に対応するナノギ ャップを創製する。さらに、3種類の温度測定法の比較検討により局所的な精密温度測定方法を 確立する。これら技術を組み合わせ、接触を前提とした固体と固体の平面間の伝熱において放射 から熱伝導への遷移現象を測定する。

3.研究の方法

(1)ナノギャップ創製、伝熱計測デバイス・システムの開発

本研究で開発したシステムの構成を図2に示す。主なデバイス構造は SOI ウエハのデバイス 層(厚さ5 ~100 µm)に形成する。ウエハ面

方位は(110)で、へき開面が(111)面になるよう に配置する。回路とのインターフェースを兼 ねた測定用治具に設置した圧電アクチュエー タを駆動し、シャトル部に引張荷重を印加、へ き開で分割してギャップを創製する。

シャトル部を櫛歯型静電アクチュエータ駆動してへき開後のギャップの間隔を変化させ、その変位を平行平板型静電容量センサで計測する。ギャップ間隔は接触時の変位を基準として相対変位から推定し、nm オーダの位



図2 ナノギャップデバイス

置分解能を実現する。試験デバイスの近傍に設置した検出回路で静電容量変化を計測する。

(2)ナノギャップ間の温度計測法検討

ギャップ両端の温度の測定精度の向上は本研究の重要な課題である。顕微ラマン分光装置を 用いたシリコンのラマンスペクトルによる測定(分解能1K)に加え、図3に示す手法について その特徴を比較検討し、最適な手法で0.1K以下の温度分解能を目指した。



図 3 温度計測法検討

a) 顕微ラマン分光による温度計測分解能向上

顕微ラマン分光による温度測定による分解能を向上するため、周期加熱による動的測定を検討する。時間分解計測を可能にするために光学系に変調機能を追加する。

b) <u>サーモリフレクタンスによる温度計測</u>

サーモリフレクタンスは励起光で周期加熱し、計測光の反射率の温度依存性を利用して材料 の熱物性、本研究では温度を測定する方法である。材料の熱伝導率、熱拡散率の測定では波長の 異なる励起光と計測光は同軸であるが、本研究ではジュール加熱や分散プリズムを用いて計測 光をオフセットさせ、温度分布をマッピングする手法を検討する。

c) 振動子の共振周波数変化による温度計測

固定端に片持ち梁を形成しその共振周波数の温度依存性を用いて測定する。単結晶シリコン 製のQ値は高く、1MHzの共振子の共振周波数変化を3Hz単位で計測することで0.1Kの分解能 が可能である。本デバイスではアンカー部に片持ち梁を組み込み、真空中での熱振動による共振 を観測する。その周波数は光学、電子顕微鏡観察により測定可能である。

(3)ナノギャップ間の伝熱測定

上記で開発したナノギャップデバイスについて適切な温度計測手法を組み合わせ、伝熱測定 を行う。シャトル部をジュール加熱(しながら可動部とナノギャップを介して相対する固定部の 双方の温度を測定する。まず、顕微ラマン分光装置を用いた計測を行い、他の手法への応用も検 討する。固定部側は酸化膜を介して固定されているので相対的に熱の逃げは少なく、理論計算上 は 0.1 K の温度分解能が実現できれば、数 μm 角で数 nm のギャップを介して流れる放射熱伝達 を測定することが可能である。

4.研究成果

(1)ナノギャップ創製、伝熱計測デバイス・システムの開発

厚み数~数 10 μm の単結晶シリコンに製作した微小電気機械システム(MEMS)デバイス上 でへき開破壊によって創製した原子レベルで平滑で対向面が一対一に対応するナノギャップを 創製するためのデバイスの設計と製作を行った。まず SOI ウエハのデバイス層(厚さ 5 μm)に 形成する MEMS ナノギャップ創製デバイスを設計した。ウエハ面方位は(110)で、へき開面が

(111)面になるように構造を配置し、ギャップ部、静電駆動アクチュエータ、静電容量型変位センサを一体化している(図4)。製作したデバイスを、真空中に設置し、圧電アクチュエータで荷蔵したのちにギャップ間の点です。半導体のバンド構造を考慮したでで、半導体のバンド構造を考慮した。この計算との比較でで、この計算との比較でで、この計算との時にでで、たいのになっていることが明らか



図4 MEMS ナノギャップデバイス

になった。[1]

さらにシャトル部を櫛歯型静電アクチュ エータ駆動によりへき開後のギャップの間 隔を変化させ、変位を平行平板型静電容量セ ンサで計測することでナノメートルの変位 分解能を実現し、カシミール力によるプルイ ンが発生する10nm程度までのギャップ制御 を実現した(図5)。[2]

(2)ナノギャップ間の温度計測法検討

3種類の温度測定法の比較検討を行った。 顕微ラマン分光を用いた温度測定の分解能 の向上のため、顕微ラマン装置のレーザを交 換し、周期加熱による動的測定を検討した。



図5 カシミール力によるプルイン観察

また、振動子の共振周波数変化による温度計測については、ナノギャップデバイスの製作に合わ せて振動子を設計してデバイスに組み込み温度測定の可否を検討した。振動子の周波数変化に よる温度測定は高精度であることを理論的に示したが、デバイスへの一体化、振動測定に課題が あった。

サーモリフレクタンスでは既存技術での温度応答性改善法を探索するために、反射膜種によ る信号強度の変化を計測し、計算実験を実施した。加えて温度計測の二次元マッピング計測実験 を通じて目的とする実験計測環境の整備を進め、温度変化に対する反射強度の推定変化量約 10⁻⁴ ~ 10⁻⁵/K に対して、10⁻⁴/K に迫る計測感度を持つ光学実験系を開発した。実験から振幅の極微小 なゆらぎ抑制(10⁻⁶オーダー)と長時間安定性に課題があることを把握した。バランス型光検出 器とロックインアンプを用いたレーザ光学系を設計し、目標とする温度計測精度(0.1K)を確認 した。さらに数種の金属薄膜で実験を行った結果、理論値と同様の傾向を示す反射光強度の温度 変化依存性が認められ、開発した計測技術の妥当性を確認した。独自の光学系に偏波面保持光フ ァイバーとバランス型検出器を採用したことで、室内温度変化や振動などの環境因子の影響を 最低限に抑え、空間分解能約 10 µm で計測標準偏差 5×10⁻⁶ でアルミ薄膜のサーモリフレクタン ス係数 5.46×10⁻⁵/K を確認した。さらに配線パターンを施した試料をジュール加熱し、投入電力 と明瞭に相関する表面温度変化を捉えることに成功した。

以上の成果を踏まえて、図6に示すナノギャップデバイスの温度測定に用いるための実験セ ットアップを構築し、伝熱実験に利用した。



図6 サーモリフレクタンス法によるナノギャップデバイス温度計測セットアップ

(3)ナノギャップ間の伝熱測定

開発したナノギャップデバイスを用いて、顕微ラマン分光装置およびサーモリフレクタンス (TR)法を用いたギャップの両端温度の測定に成功した。伝熱測定については、可動部を通電によ り最高 100K 程度まで加熱し、ギャップの両端の温度を測定した。これらを真空チャンバー中で 行い、真空下かつ顕微鏡観察下での計測を進めた。

図7は静電アクチュエータの印加電EV_{AW}に対するシャトル温度、及び静電容量の測定結果で ある。シャトルの温度上昇TSは50Kであり、シャトルがアンカー・ストッパーと接触していな いと考えられる印加電圧26.5 V<V_{AW}<175 Vの範囲では、ほぼ一定で安定している。T_Sは、静電 容量からギャップが接触したと考えられるV_{AW}: 26.5 Vで不連続に29Kまで急落し、 V_{AW} < 26.5 では再び安定し、ほぼ一定となった。ギャップが存在するときの熱輸送は測定誤差1.5K以下で あると考えられ、これは今回測定されたギャップ間熱輸送が9.0×10⁻⁵W以下であり、有限要素シ ミュレーションから単位面積当たりの熱流束は3.0×10⁶W/m²以下であったと計算できる。一方 で、接触時の熱輸送は6.6×10⁻⁴Wであり、熱流束は2.2×10⁷W/m²と計算される。 ギャップ接触後、V_{AW}が小さくなるにつれて ギャップの接触応力は増加しており、接触時に 不連続的な温度低下、すなわち熱コンダクタン スの急増が生じたが、ギャップの接触応力が増 加しても熱コンダクタンスに大きな増加は見 られていない。したがって、ここでは Hertz の 接触理論の対象とする曲面と曲面の接触とは 異なる接触、すなわち、平面と平面の接触が生 じていると考えることができる。このことはデ バイスのへき開面が平滑であることを強く示 唆する結果である。一方で、ギャップの pull-in まで有意な温度低下は見られず、ギャップが維 持されている領域において有意なギャップ間 熱輸送は測定できなかった。

この実験により、ギャップ間隔制御とギャッ プ間温度差形成が提案したデバイス・電気回路 を用いて同時実施でき、ギャップ間熱輸送測定



において有効であることを実証した。一方で、有意なナノギャップ間熱輸送の測定のためには顕 微 Raman 分光法は温度の測定精度・分解能が十分ではなく、より高精度・高分解能な温度測定 方法を用いる必要があることが分かった。

サーモリフレクタンス(TR)法を用いた伝熱測定では真空チャンバーをTR測定用光学系へ 治具を用いて垂直に設置し、CCDで観察し測定位置がマス中央部になるように位置調整した。 真空にしたのち、ギャップ縮小用静電アクチュエータへ60V、ギャップ拡大用静電アクチュエ ータへ100Vの電圧を印加し、非加熱・静止状態でNDフィルターの減光率C_{ND}を調整し、TR測 定を行った。測定では、500秒間で約2×10⁻⁴のドリフトが見られたが、その変化は緩やかであ

った。次に、縮小用アクチュエータの印加電圧 は維持したまま、非加熱状態でギャップ拡大 用静電アクチュエータの印加電圧を 150 V か ら 15V まで変化させ、ギャップ間隔を変位セ ンサにより測定し、同時に TR 測定も行った。 変位検出の感度は 0.18 fF/nm であり、最小ギャ ップ間隔は 10 nm であった。静電容量変化の 標準誤差はギャップが 100 nm 以下の領域で 0.06 fF であり、0.3 nm の測定誤差に相当する。 図8は TR 測定と静電容量変化の時系列デー タであり、非加熱状態であるにも関わらずシ ャトルの変位に対応して反射率が変化してい る。特にシャトルがアンカーと接触した時点 に対応して 14×10⁻⁴ の大きな反射率変化がみ られているため、この変化は光学系に起因す るノイズやドリフトではない。アクチュエー タの駆動による構造の傾きが生じ、反射率に 影響を与えていることが示唆された。

Stopper release ×10-4 Capacitance change Reflectance change 10 400 0 200 -10(fF) 1000 1200 200 400 600 800 0 Time (s) $\times 10^{-4}$ 10 112 Reflectance change Separation 56 0 Pull-ir (nm -10 0 800 900 1000 1100 1200 600 700 Time (s) TR 法によるナノギャップ伝熱計測 図 8

(4)まとめと今後の展望

以上のように、MEMS デバイス上に創製したナノギャップを MEMS アクチュエータ、センサ と利用して間隔制御しながら、伝熱測定に顕微ラマン分光、サーモリフレクタンスによる精密な 局所温度測定を行い、固体接触面における伝熱現象という基本的でありながらいまだに明らか でない現象の解明を進めた。この技術を今後は様々な機械・構造における熱エネルギーの効率的 な利用に応用していく。

引用文献

[1] Yuki Akura, Masaki Shimofuri, Amit Banerjee, Jun Hirotani, Toshiyuki Tsuchiya, "Gap distance dependence on field emission at the nanogap between silicon cleavage surfaces," Journal of Vacuum Science and Technology B, Vol. B **41**, 022805 (2023)

[2] Masaki Shimofuri, Amit Banerjee, Jun Hirotani, Yoshikazu Hirai, Toshiyuki Tsuchiya, "Nanometer order separation control of large working area nanogap created by cleavage of single-crystal silicon along {111} planes using a MEMS device," Journal of Microelectromechanical Systems, Vol. 32, Issue 1 (2023), pp. 67-73.

5.主な発表論文等

<u>〔雑誌論文〕 計3件(うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件)</u>

1.者者名 Shimofuri Masaki、Banerjee Amit、Hirotani Jun、Hirai Yoshikazu、Tsuchiya Toshiyuki	4. 查 32
2.論文標題	5 . 発行年
Nanometer Order Separation Control of Large Working Area Nanogap Created by Cleavage of Single-	2023年
Crystal Silicon Along {111} Planes Using a MEMS Device	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Microelectromechanical Systems	67 ~ 73
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1109/JMEMS.2022.3213999	有
「オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-

1.著者名	4.巻
Akura Yuki, Shimofuri Masaki, Banerjee Amit, Hirotani Jun, Tsuchiya Toshiyuki	41
2.論文標題	5 . 発行年
Gap distance dependence on field emission at the nanogap between silicon cleavage surfaces	2023年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Vacuum Science & Technology B	022805 ~ 022805
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10,1116/6,0002456	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-

1.著者名	4.巻
Shimofuri Masaki, Murakami Taichi, Miyake Shugo, Banerjee Amit, Hirotani Jun, Tsuchiya	62
Toshiyuki	
2.論文標題	5 . 発行年
Numerical calculation of thermoreflectance coefficient of c-Si for wavelengths of 200-800 nm	2023年
and temperatures of 300–500 K	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Japanese Journal of Applied Physics	112006 ~ 112006
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.35848/1347-4065/ad07f8	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-

〔学会発表〕 計9件(うち招待講演 1件/うち国際学会 5件)

1.発表者名

Yuki Akura, Masaki Shimofuri, Amit Banerjee, Jun Hirotani, Toshiyuki Tsuchiya

2 . 発表標題

Characterization of gap-distance dependency on field emission at nanogap between silicon cleavage surfaces by numerical calculations

3 . 学会等名

2022 JSME-IIP/ASME-ISPS Joint Conference on Micromechatronics for Information and Precision Equipment (MIPE 2022)(国際学会) 4.発表年

2022年

1.発表者名

土屋智由

2.発表標題

真空ナノギャップを用いた熱電子発電実現に向けて

3 . 学会等名

伝熱学会 関西支部 第17回関西伝熱セミナー(招待講演)

4.発表年 2022年

1.発表者名

安倉 祐樹、霜降 真希、Banerjee Amit、廣谷 潤、土屋 智由

2.発表標題

半導体へき開面ナノギャップにおける電界電子放出特性のギャップ間隔依存性の数値計算による評価

3 . 学会等名

日本機械学会 2022年度 年次大会

4.発表年 2022年

1.発表者名

霜降 真希, 廣谷 潤, Banerjee Amit, 土屋 智由

2.発表標題

パルス電圧印加を用いた間隔可変単結晶シリコンナノギャップの電子輸送特性計測

3.学会等名

第13回「マイクロ・ナノ工学シンポジウム」

4.発表年 2022年

1.発表者名

Masaki Shimofuri, Yoshikazu Hirai, Amit Banerjee, Toshiyuki Tsuchiya

2.発表標題

SOI-MEMS device for fabrication and physical properties measurement of single-crystal silicon nanogap with (111) cleavage plane surfaces

3 . 学会等名

34th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2021)(国際学会)

4.発表年 2021年

. 発表者名

1

Masaki Shimofuri, Yoshikazu Hirai, Amit Banerjee, and Toshiyuki Tsuchiya

2.発表標題

Observation of Pull-In by Casimir Force in MEMS-Controlled Nanogap Fabricated by Silicon Cleavage

3.学会等名

The 35th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS 2022)(国際学会)

4.発表年 2022年

1.発表者名 Souto Yamashita, Shugo Miyake

2.発表標題

Evaluation of microscale thermal characteristics of coldrolled aluminum alloy by thermoreflectance method

3 . 学会等名

The 34th International Microprocesses and Nanotechnology Conference(Online)(国際学会)

4.発表年 2021年

1.発表者名

Fumiya Nakamura, Taishi Murakami, Shugo Miyake

2.発表標題

Evaluation of thermal effusivity of intermetallic compounds by modulated thermoreflectance method

3.学会等名

The 34th International Microprocesses and Nanotechnology Conference(Online)(国際学会)

4.発表年 2021年

1.発表者名 霜降 真希,吉村 光葵,文 和彦,平井 義和, Banerjee Amit,土屋 智由

2.発表標題

単結晶シリコンへき開面ナノギャップ間の熱電界電子トンネリング計測

3.学会等名

日本機械学会 2021年度 年次大会

4.発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

単結晶へき開面ナノギャップの物性 https://www.nms.me.kyoto-u.ac.jp/propsiliconnanogap/ ナノギャップを用いた熱電子発電 https://www.nms.me.kyoto-u.ac.jp/nanogapsi/

6.研究組織

<u> </u>			
	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
研究分担	三宅 修吾 (Shugo Miyake)	摂南大学・理工学部・教授	
有	(60743953)	(34428) 吉和士兰,丁兰耳穴利,准教垣	
研究分担者	廣合 润 (Jun Hirotani)	示師人子・ 工子研究村・准教授	
	(80775924)	(14301)	

7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8.本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国相手方研究機関	
----------------	--