

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 5 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560203

研究課題名（和文） ナノ構造を利用したフォノン・電子の平均自由行程解析

研究課題名（英文） Experimental Analysis on Mean Free Paths of Phonons and Electrons by using Micro-machined Nano-structures

研究代表者

宮崎 康次 (KOJI MIYAZAKI)

九州工業大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：70315159

研究成果の概要（和文）：本研究は、ナノ構造で材料の熱物性を制御する際に必要となるフォノンと電子の平均自由行程を MEMS 技術で作製したデバイスにより測定することを図った。数 μm 程度の孔を多数有する Si 薄膜を生成し、その熱伝導率を測定したところフォノンの平均自由行程が電子のものより長く、見かけの熱伝導率が従来の拡散輸送の式で説明できない結果を得た。さらにその長さを古典的なフォノン輸送の式で見積もったところ、室温付近で $3\mu\text{m}$ 程度と比較的長い結果が示され、電子の平均自由行程より長いことも明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：We intend to measure the mean free paths of phonons and electrons by using micro-machined Si thin films with micro-holes. The thermal conductivities of the micro-structured Silicon were measured, and the measured values can be explained by the classical transport model. The mean free path of phonons is calculated to be about $3\mu\text{m}$ by Fucks-Sondheimer model, and it is longer than that of electrons.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度	0	0	0
年度	0	0	0
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：マイクロ・ナノスケール伝熱，熱伝導，フォノン，電子，熱電発電

1. 研究開始当初の背景

新材料開発やシステムの改善など様々な面からエネルギー変換技術の高効率化が取り組まれてきたが、ナノテクノロジーにより電気的特性、熱的特性が制御でき、近年では太陽光発電や熱電発電の高効率化に関する優れた成果が次々と報告されている。ナノテクによる発電素子の高効率化の流れの中、我々もナノ多孔構造を利用した超断熱技術を利用、フォノン輸送数値解析、熱輸送モデルの構築、

ナノ構造の作製とその熱物性測定を通じた熱電発電の高効率化に取り組んできた。しかし高効率化の壁となっているのが、電子輸送の予測以上の低下である。作製手法によっては、フォノン輸送よりも電子輸送のほうが大幅に低減することから、フォノンの平均自由行程だけでなく、電子の平均自由行程を明確にする手法の確立が必須となっている。

2. 研究の目的

これまで熱輸送を担う格子振動（フォノン）のほうが電流となる電子よりも、平均自由行程が長いため、ナノ構造の影響を受けやすいとされてきた。実際に熱電発電の高効率化に関する報告や我々の成果を検討しても、熱電半導体では室温付近でおおよそ 100nm 程度と極めて長いフォノンの平均自由行程が導かれる。本研究では、MEMS 技術により制御された構造の熱伝導率、導電度を測定し、それら測定結果から、輸送係数低減を予測するモデルを構築し、さらにフォノンならびに電子の平均自由行程を得る手法の確立を目的とする。

3. 研究の方法

一般的な MEMS 技術を利用して、微細構造を制御した Si 薄膜を生成し（図 1）、通電加熱することで、Si 薄膜の見かけの熱伝導率と導電率を測定する。図 1(e)のプロセスでは、KOH によるウェットエッチングで背面の Si を取り去る際に表面を SiO₂ で保護している。その際に働く残留応力で厚さ 2 μ m の Si 薄膜に亀裂が入るため、SiN_x 膜を生成して多層膜とすることで、残留応力を緩和した。最後は、Si 単体の薄膜とするため、Si 表面に残る酸化膜、窒化膜をドライエッチングで取り除いた。Si 薄膜の平面形状は、4 端子法による導電度測定を行えるよう設計している。

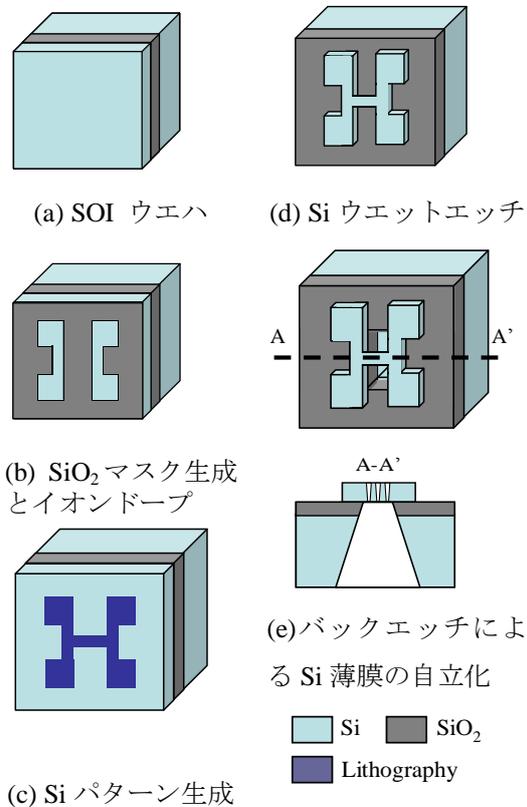


図 1 多孔 Si 薄膜生成プロセス概略

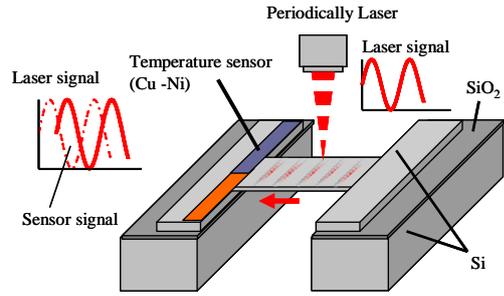


図 2 レーザー周期加熱法概略

作製した形状を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察して、膜厚、幅、長さ、孔サイズ、孔配置を把握する。その上で薄膜に電流を印加して自己発熱させ、同時に電気抵抗を測定することで平均温度上昇を測定し、導電度、熱伝導率を同時測定した。熱伝導率測定については、レーザー周期加熱法による方法（図 2）も試みて、測定結果をダブルチェックした。レーザー周期加熱法では、薄膜の一端を周期加熱し、温度拡散率 a の大きさに対応して、薄膜他端に遅れて到達する温度情報から温度拡散率を得る測定法である。他端の温度上昇を測定するため、Cu-Ni 薄膜熱電対をサンプル上に作製した。得られた温度拡散率に対して、熱容量にバルク状 Si の値を仮定して、見かけの熱伝導率を得て、さらに現象を考察した。

4. 研究成果

図 3 に作製したデバイスの SEM 像を示す。鳥瞰図(a)に示すように Si 薄膜は自立して浮いた形になっており、根元部には曲率をつけることで応力集中を防ぐ工夫をした。Si 薄膜の厚みは SEM 観察結果より 2 μ m であり、Si 薄膜を流れる熱が膜面内方向にのみ伝わるよう、形状を工夫している。孔を全く持たない Si 薄膜を reference 膜として、パターン 1 を格子状孔配置、パターン 2 を格子状孔配置で孔サイズを大きくしたもの、パターン 3 を

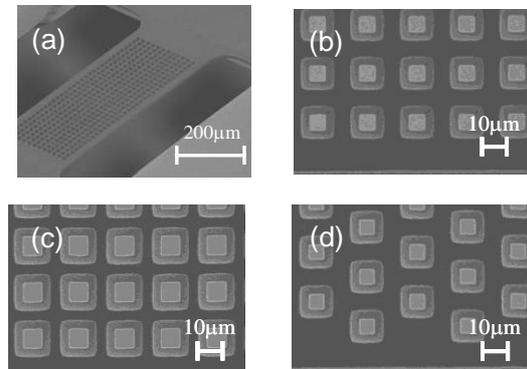


図 3 生成した多孔 Si 薄膜の SEM 像。(a)鳥瞰図、(b)格子状孔配置(c)孔径大(d)千鳥状孔配置

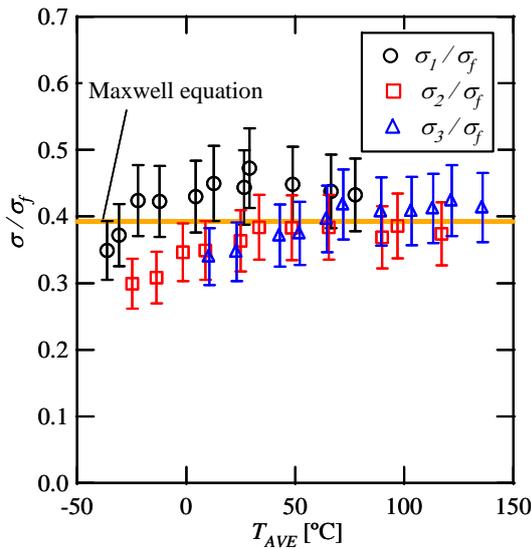


図4 測定された多孔 Si 薄膜の導電度

孔サイズはパターン1と同じとして、配置を千鳥状にしたものを作製した。ウェハごとに不純物濃度も異なるため、上記4つのパターンを同じウェハ上に生成した。孔を配置させたサンプルは、孔を生成する領域を調整して、膜全体として空隙率が同じになるよう設計している。SEM 観察結果からは33%であった。

導電度の測定結果を図4、熱伝導率測定結果を図5に示す。横軸は測定平均温度、縦軸は孔のない Si 薄膜の物性値との比となっている。3~4 μm オーダーの微細構造に対し、見かけの導電率は、ほぼ同じ値を示している。空隙率33%を仮定して得た見かけの導電率を Maxwell の式として実線で示している。パターンの違いに関わらず、測定温度範囲でおおよそ解析値と一致しており、電子の輸送が拡散的であることを示しており、3 μm よりも圧倒的に電子の平均自由行程が短いことを示している。一方で測定された熱伝導率は、拡散輸送を仮定して導かれる Eucken の式の予測値よりも低い値を示している。これは熱の輸送が準弾道輸送であり、孔構造の影響を強く受けていることを示している。すなわち Si のフォノンの平均自由行程は、3~4 μm よりも長いことを示しており、特にパターン3の千鳥状孔配置の熱伝導率が最も小さくなっていることとも矛盾しない。温度依存性についてもフォノンの平均自由行程が低温になるほど伸びることが知られており、どの孔配置をもつ形状でも、熱伝導率が構造によって低下する効果が低温で強く表れた。

上記の見かけの熱伝導率測定が妥当であるか検証するため、レーザー周期加熱により温度拡散率を測定した結果を図6に示す。どの測定も室温で行った。横軸は加熱位置と温度測定位置の距離、縦軸に加熱と温度上昇の位相遅れを示しており、曲線の傾きから熱拡

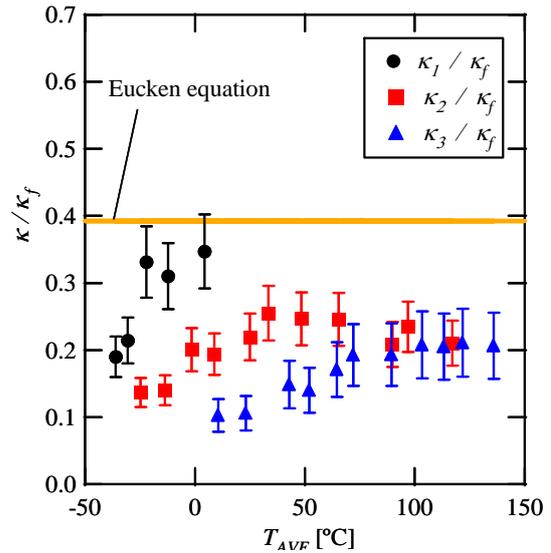


図5 測定された多孔 Si 薄膜の熱伝導率

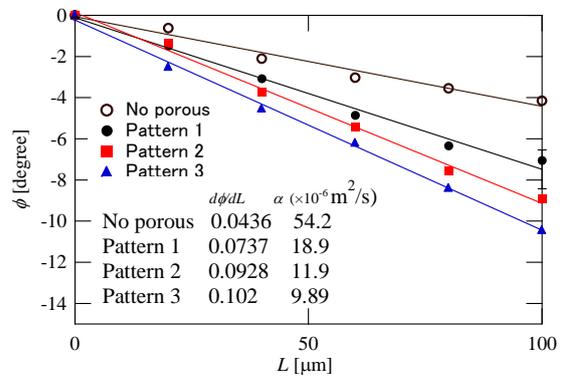


図6 レーザー周期加熱により測定された温度拡散率

散率 a が計算できる ($a = pf / (\rho f / \kappa L)^2$). ポラス無しの薄膜の熱拡散率に対して、比熱、密度をバルク値と同じと仮定すると、薄膜の熱伝導率はおよそ $89 \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ に相当し、バルク状 Si の熱伝導率の6割程度となる。この結果に対して Fucks-Sondheimer の式を使い、薄膜表面で完全にフォノンが拡散反射していることを仮定すると、フォノンの平均自由行程は $3\mu\text{m}$ と計算され、先の多孔 Si 薄膜の熱伝導がフォノンの準弾道輸送によることを支持する結果となっている。さらに測定された温度拡散率から孔のある薄膜の熱伝導率を求め、孔のない薄膜の熱伝導率との比を計算すると、パターン1のものを除き、自己発熱で得た熱伝導率測定結果とほぼ一致し、本研究における熱伝導率測定の妥当性も確認できた。しかし、自己発熱法で得たパターン1の熱伝導率は、レーザー周期加熱法で得た熱伝導率より、大きい値が得られており、引き続き、熱伝導率と導電度を同時測定できる自己発熱による熱伝導率測定の測定精度を高める課題も浮き彫りとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

- ① Koji Miyazaki, Saburo Tanaka, and Daisuke Nagai, Heat conduction of a porous material, Journal of Heat Transfer, 査読有, Vol.134, No.5, 051018 (2012).
- ② Harutoshi Hagino, Yosuke Kawahara, Aimi Goto, and Koji Miyazaki, Simultaneous measurements of thermal conductivity and electrical conductivity of micro-machined Silicon films, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 査読有, Vol.31, 012020, (2012).
- ③ 永井大資, 宮崎康次, 塚本寛, 分子動力学法を用いたナノポーラス構造Siにおける熱伝導解析, 日本機械学会論文集B編, 査読有, Vol. 76, pp.1879-1883 (2010).
- ④ 宮崎康次, MEMS を利用した温度測定, 日本機械学会論文集C編, 査読有, Vol. 76, pp.1890-1892 (2010).

〔学会発表〕(計12件)

- ① 川原庸資, 岩田尚, 萩野春俊, 宮崎康次, レーザー周期加熱によるSi薄膜の面方向熱伝導率測定, 日本機械学会九州支部第66期総会・講演会, 2013年3月13日, 福岡.
- ② Yosuke Kawahara, Harutoshi Hagino, Hisashi Iwata, and Koji Miyazaki, In-plane Thermal and Electrical Conductivity of Si Thin Film with Periodic Microporous, International Forum on Heat Transfer 2012, 2012年11月13日, 長崎.
- ③ 川原庸資, 萩野春俊, 岩田尚, 宮崎康次, 多孔Si薄膜の熱・電気輸送特性, 第33回日本熱物性シンポジウム, 2012年10月3日, 大阪.
- ④ Harutoshi Hagino, Yosuke Kawahara, Hisashi Iwata, and Koji Miyazaki, Effects of Micro-Structures on In-plane Thermal Conductivity and Electrical Conductivity of Silicon Thin Film, 18th Symposium on Thermophysical Properties, 2012年6月24日, Boulder.
- ⑤ 萩野春俊, 川原庸介, 後藤愛美, 宮崎康次, 多孔薄膜Siの面方向熱伝導率と電気伝導率測定, 第49回日本伝熱シンポジウム, 2012年5月30日, 富山.
- ⑥ Harutoshi Hagino, Yosuke Kawahara, Aimi Goto, Toru Hiwada, and Koji Miyazaki, In-Plane Thermal Conductivity and Electrical Conductivity Measurements of Silicon Thin Film, The Eighth KSME-JSME Thermal and Fluids Engineering Conference, 2012年3月18日, Incheon.
- ⑦ 萩野春俊, 川原庸介, 後藤愛美, 檜和田徹, 宮崎康次, 薄膜Siの面方向熱伝導率

と電気伝導率の同時測定, 日本機械学会九州支部第65期総会講演会, 2012年3月16日, 佐賀.

- ⑧ Harutoshi Hagino, Koji Miyazaki, In-plane Thermal Conductivity of Silicon Thin Films with Periodic Micro-pores, 7th US-Japan Joint Seminar on Nanoscale Transport Phenomena -Science and Engineering-, 2011年12月11日, 伊勢志摩.
- ⑨ Koji Miyazaki, Heat Conduction in a Nano-Porous Material and its Application, ASME 2011 9th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels, 2011年6月19日, Edomonton.
- ⑩ 萩野春俊, 永井大資, 檜和田徹, 宮崎康次, 薄膜Siの面方向熱伝導率と電気伝導率の同時測定, 第48回日本伝熱シンポジウム, 2011年6月1日, 岡山.
- ⑪ 宮崎康次, Zheng Yanqiong, 久保脇勇貴, 柏木誠, 自己組織化ポーラス有機薄膜生成, 日本機械学会中国四国・九州支部徳島講演会, 2010年10月16日, 徳島.
- ⑫ 永井大資, 宮崎康次, 萩野春俊, 分子動力学法を用いた多孔ナノ構造Siの熱伝導解析, 第2回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 2010年10月13日, 松江.

〔図書〕(計2件)

- ① 鈴木雄二 他54人, NTS, 環境発電ハンドブック, 2012, pp.174-180.
- ② 舟橋良次 他42名, CMC, 熱電変換技術の基礎と応用 ―クリーンなエネルギー社会を目指して―, 2011, pp.309-324.

〔その他〕

ホームページ等

宮崎康次 熱デバイス研究室
<http://www.mech.kyutech.ac.jp/tdl/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

宮崎 康次 (KOJI MIYAZAKI)

九州工業大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 70315159