

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 18 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560813

研究課題名(和文) 界面熱伝導評価方法の開発およびGe/Si界面熱伝達率の制御

研究課題名(英文) Development of measurement method and engineering of Ge/Si interfacial thermal conductance

研究代表者

徐一斌(Xu, Yibin)

独立行政法人物質・材料研究機構・ハイブリット材料ユニット・主幹研究員

研究者番号：30354244

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円、(間接経費) 1,260,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、半導体/半導体界面を対象として、単一界面の熱抵抗の測定手法を確立した。分子動力学シミュレーションを用いて、Si/Geの理想界面、空孔を含む界面、および原子拡散のある界面に対して、界面付近のフォノンDOSと緩和時間を解析し、界面熱抵抗を計算した。界面付近のフォノンDOSの変化、フォノン緩和時間の周波数依存性、およびそれらの界面熱抵抗に対する影響を解明した。スパッタ成膜したGe(Si)のアモルファス・多結晶薄膜を用いて、Ge(Si)薄膜の面外方向の熱伝導率、およびSi/Geの界面熱抵抗を測定した。Si/Geの界面熱抵抗は、界面の結晶状態やラフネス等に強く依存することが分かった。

研究成果の概要(英文)：A measurement method of interfacial thermal resistance for semiconductor/semiconductor interface has been developed. Molecular dynamics simulation has been performed on Si/Ge interface, including interfaces with vacancies and atomic diffusion. The phonon DOS and relaxation time at the interfacial region, and the interfacial thermal resistance have been calculated. The shift of phonon DOS, frequency dependence of phonon relaxation time and their effects on interfacial thermal resistance have been analyzed. Out-of-plane thermal conductivity of sputtered amorphous and polycrystalline Ge(Si) thin films and Si/Ge interfacial thermal resistance have been measured. The Si/Ge interfacial thermal resistance is found strongly dependent on the crystalline state and roughness of the interface.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・無機材料・物性

キーワード：界面 熱伝導 周波数領域法 分子動力学シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

熱電変換材料の性能は、性能指数 ZT によって決定されており、 ZT は、 $\alpha^2\sigma T/\kappa$ で表わされる。(α はゼーベック係数、 σ は電気伝導率、 κ は熱伝導率) 大きな ZT を得るためには、ゼーベック係数と電気伝導率を増大させ、熱伝導率を抑制する必要がある。

$\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Sb}_2\text{Te}_3$ や、 Si/SiGe などの複合材料は、大きい熱電性能指数を有するため、熱電変換材料開発の重要な方向性を担っている。それらの複合材料の熱電性能指数が大きい原因は、界面でのフォノン散乱によって、熱伝導率が抑制されることによるものと考えられている。しかし、界面における熱抵抗の測定は困難であり、直接的な証明は、得られていない。ゆえに、更なる熱電性能向上に向けた材料選択の指針が立たず、熱電変換用の複合材料 (以後：複合熱電材料) の組み合わせは試行錯誤的に行うしかない状況にある。界面の効果を最大限に活用するためには、界面熱抵抗の評価手法の開発を行い、また、そのメカニズムおよびそれに影響を及ぼす物理・化学・材料要素の解明が必要不可欠である。

2. 研究の目的

本研究は、複合熱電材料に多く存在する半導体/半導体界面を対象として、単一界面の熱抵抗の測定手法を確立する。また、実験と分子動力学シミュレーションの2方面からのアプローチにより界面熱伝導のメカニズムを解明し、界面熱伝導を制御するための指針を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

- (1) 周期性出力可変レーザーを用いた周波数領域法界面熱抵抗測定方法とその装置を開発し、単一界面の熱抵抗の測定手法を確立する
- (2) Ge/Si 界面を対象として、実験と分子動力学シミュレーションの2方面からのアプローチにより、熱伝導のメカニズムおよび原子レベルでの界面構造と熱抵抗との関係を解明する
- (3) 異なる成膜条件で Ge/Si 界面を作製し、拡散やラフネスなどのマイクロ組織と界面熱抵抗との関係についての知見を得る。

4. 研究成果

(1) 周期性出力可変レーザーを用いた界面熱抵抗測定装置を作製し、薄膜と基板の二層系システムに対して、周期性レーザーによる加熱時の熱伝導方程式を解き、表面温度の振幅、位相と界面熱伝導度の関係式を求めた。Au/サファイア試料を用いて、その界面熱抵抗を評価し、他の測定法による測定値、および理論計算の結果と比較し、装置の有効性と精度を検証した。

(2) 共有結合系に適用可能な

Stillinger-Weber (SW) ポテンシャルの計算プログラムを作成し、 Si/Ge 界面に対して、入抜熱を伴う非平衡分子動力学計算により計算系に温度勾配を生じさせ、界面での温度ギャップから Si/Ge の界面熱抵抗を算出した。計算モデルとしては、数万原子系モデルおよび数十万原子系モデルの2つのモデルを用意し、結果を比較した。また、それぞれのモデルに対して、平均温度 50、300、500、700 K での界面抵抗を算出した (図 1)。

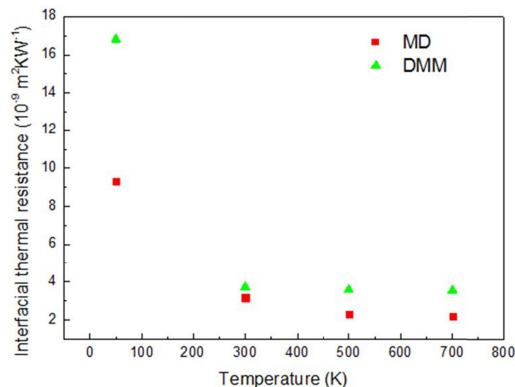


図 1 分子動力学 (MD) と diffusion mismatch model (DMM) を用いて計算した Si/Ge 界面熱抵抗

さらに、空孔や拡散領域などを含む Ge/Si 界面のモデルを作成し、界面熱伝導の分子動力学シミュレーションを行い、界面熱抵抗を計算した。計算モデルとしては、総原子数 54528 のモデルを用意した。相互拡散モデルは、 Si 、 Ge それぞれ界面からの 5 層を置換領域として、その中の全原子から、乱数を用いて置換する原子をランダムに抽出した。置換原子の割合は、20、50%とした。空孔モデルは、 Si 、 Ge それぞれ、界面から 2 層の領域に原子空孔を導入した。導入する空孔数は、 Si 側および Ge 側それぞれ 5 個とした (界面から 1 層目に 3 個、2 層目に 2 個)。以上のモデルを用いて、平均温度 50、300、500、700 K での界面熱抵抗を計算した。その結果として、 Si/Ge 界面熱抵抗は、相互拡散の割合に影響を受け、相互拡散割合が 20% の時に無拡散の場合よりも熱抵抗が小さく、また、空孔のある場合も、理想界面より熱抵抗が小さいことがわかった (図 2)。

更に Si/Ge の理想界面、空孔を含む界面、および原子拡散のある界面に対して、界面のフォノン DOS と緩和時間を解析し、界面熱抵抗を計算した。界面では、両側材料のフォノン DOS のシフトにより、共通の周波数領域を拡大し、界面熱抵抗を低減できることを証明した。また、界面では、すべてのフォノンが散乱されるのではなく、低周波数のフォノンが散乱されずに界面を通過できることも分かった (図 3)。これらの結果は、将来、界面フォノン DOS の制御により、界面熱抵抗を制御する可能性と方向性を示している。

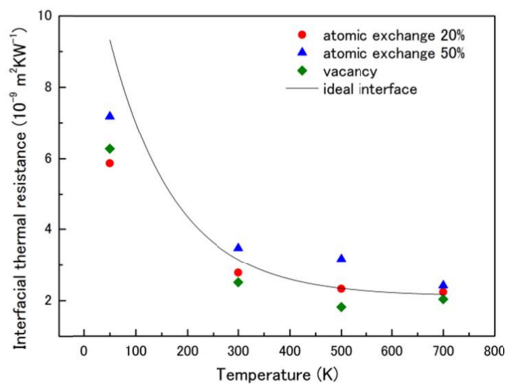


図2 Si/Ge 理想界面、空孔および原子混合のある界面の熱抵抗

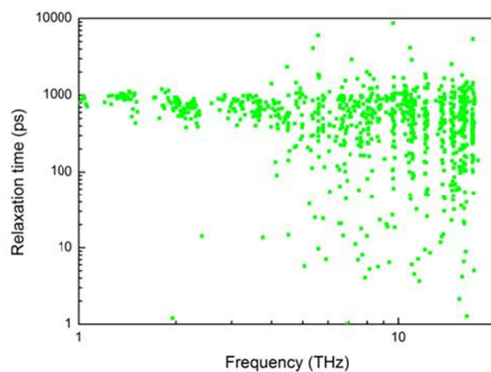


図3 300Kにおける界面付近Siのフォノン緩和時間

(3) Si/Ge 界面熱抵抗の測定

スパッタ成膜により Si (Ge)単結晶基板の上に成膜した Ge(Si)のアモルファス・多結晶薄膜を用いて、Ge(Si)薄膜の面外方向の熱伝導率、および Si/Ge の界面熱抵抗を測定した。アモルファス Ge と Si 薄膜では、膜厚が 100nm 以上になっても、熱伝導率が膜厚の増加により増加することが観察された。それは、アモルファスの Ge と Si 薄膜において、平均自由行程が 100nm 以上のフォノンが存在することを示す。また、Si/Ge の界面熱抵抗に関しては、界面の結晶状態やラフネス等に強く依存することが分かった (図4)。

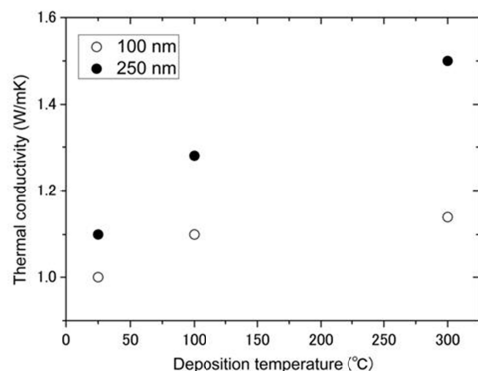


図4 アモルファスGe薄膜熱伝導率の膜厚依存性および成膜温度依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

- [1] T. Z. Zhan, Y. Xu, M. Goto, Y. Tanaka, R. Kato, M. Sasaki, and Y. Kagawa, "Phonons with long mean free paths in a-Si and a-Ge," Applied Physics Letters, Vol. 104 (2014) 071911. (査読あり)
- [2] T. Z. Zhan, Y. Xu, M. Goto, Y. Tanaka, R. Kato, M. Sasaki, and Y. Kagawa, "Thermal conductivity of sputtered amorphous Ge films," AIP Advances, Vol. 4 (2014) 027126. (査読あり)
- [3] M. Kang, S.W. Kim, J. Ryu, Y. Xu and R. Kato, "Optical and Thermal Properties of V2O5 Thin Films with Crystallization", J. Korean Physical Society, Vol. 62 (2013) 1134. (査読あり)
- [4] 徐一斌, 複合材料熱伝導性シミュレーション, Polyfile, Vol.50 (2013), 33-37. (査読なし)
- [5] Y. Xu, M. Goto, R. Ryoza, Y. Tanaka and Y. Kagawa, "Thermal Conductivity of ZnO Thin Film Produced by Reactive Sputtering," Journal of Applied Physics, Vol. 111 (2012) 084320. (査読あり)
- [6] Ryoza Kato, Yibin Xu, and Masahiro Goto, "A New Technique for Enhancing Sensitivity of the 2ω Method by Applying a Bismuth Film Thermoreflectance Sensor on Top of the Metal Film-Dielectric Substrate Sample", Japanese Journal of Applied Physics, 50 (2011) 046602. (査読あり)
- [7] Ryoza Kato, Yibin Xu, and Masahiro Goto, "Development of a Frequency-Domain Method Using Completely Optical Techniques for Measuring the Interfacial Thermal Resistance between the Metal Film and the Substrate", Japanese Journal of Applied Physics, 50 (2011) 106602. (査読あり)

〔学会発表〕(計30件)

- [1] Y. Xu, "Modeling and measurement of thermal resistance at interfaces", (Invited), CIMTEC 2014, June 8-13, 2014, Montecatini Terme, Italy.
- [2] Y. Xu, "Constitutional and structural dependence of thermal conductivity of thin film and interface", (Invited), HYDROGENIUS & I2CNER Joint Research Symposium, Jan. 31, 2014, Fukuoka, Japan.
- [3] 徐一斌, 樺島智大, 源聡, Zhan Tianzhuo, "Si/Ge 界面熱抵抗の分子動力学シミュレーション" 第34回熱物性シンポジウム, 11月20-22日, 2013, 富山.
- [4] 徐一斌, "材料データベースを用いた複合材料熱伝導特性の予測", MITS2013, 11月7日, 2013, 京都.
- [5] T. Z. Zhan, Y. Xu, M. Goto, Y. Tanaka,

- R. Kato, M. Sasaki, and Y. Kagawa, "Thermal conductivity of sputtered amorphous Ge films," ISMNT4, October 8-12, 2013, Shanghai, China.
- [6] Y. Xu, "Interfacial Thermal Conductance by Phonon and Electron" (Invited), ISMNT-4, Oct. 8-12, 2013, Shanghai, China.
- [7] T. Z. Zhan, Y. Xu, M. Goto, Y. Tanaka, R. Kato, M. Sasaki, and Y. Kagawa, "Thermal conductivity of sputtered amorphous Si films," The 10th Asia Thermophysical Properties Conference, September 23-October 3, 2013, Jeju, Korea.
- [8] Y. Xu, T. Kabashima, S. Minamoto, T. Zhan, "Molecular Dynamics Simulation on Interfacial Thermal Resistance of Si/Ge Interface with Diffusion and Vacancy", The 10th Asia Thermophysical Properties Conference, September 23- October 3, 2013, Jeju, Korea.
- [9] T. Z. Zhan, Y. Xu, M. Goto, Y. Tanaka, R. Kato, M. Sasaki, and Y. Kagawa, "Thermal conductivity of sputtered amorphous Ge films," IUMRS-ICAM2013, September 22-28, 2013, Qingdao, China.
- [10] Y. Xu, "Application of Database in Thermal Design of Hybrid Materials", IUMRS-ICAM2013, Sep. 22-28, 2013, Qingdao, China.
- [11] Y. Xu, "Measurement and Simulation of Interfacial Thermal Resistance" (Invited), PRICM-8, Aug. 4-9, 2013, Hawaii, USA.
- [12] T. Z. Zhan, Y. Xu, M. Goto, R. Kato, and Y. Kagawa, "Thermal conductivity of Ge thin film on Si substrate," 2013 MRS Spring Meeting, April 1-5, 2013, San Francisco, USA.
- [13] Y. Xu, M. Goto, R. Kato, Y. Kagawa, "Thermal Conductance of Nanoscale ZnO Thin Film", 2013 MRS Spring Meeting, April 1-5, 2013, San Francisco, USA.
- [14] 徐一斌, "複合材料の熱設計&界面熱抵抗の解析" (招待講演), エレクトロニクス実装学会サマーマネージメント公開研究会, 1月26日, 2013, 東京.
- [15] 徐一斌, "複合材料熱伝導のシミュレーションと特性予測" (招待講演), 環境・エネルギー材料熱物性シンポジウム 2012, 2012年11月20日, 東京.
- [16] Zhan Tianzhuo, 徐一斌, 後藤真宏, 加藤良三, 香川豊, "Thermal Conductivity of Ge Thin Film on Si Substrate," 環境・エネルギー材料熱物性シンポジウム 2012, 2012年11月20日, 東京.
- [17] 樺島智大, 源聡, 徐一斌, "非平衡分子動力学法による Si/Ge 界面熱抵抗の計算," 環境・エネルギー材料熱物性シンポジウム 2012, 2012年11月20日, 東京.
- [18] 徐一斌, 後藤真宏, 加藤良三, 田中義久, 香川豊, "反応性スパッタ法で作製した ZnO 薄膜の熱伝導率およびその組織構造依存性," 第 33 回日本熱物性シンポジウム, 2012年10月3-5日, 大阪.
- [19] 加藤良三, 徐一斌, Zhan Tianzhuo, 後藤真宏, "1/2 法において1次元熱流モデルが適用できる測定周波数の算出," 第 33 回日本熱物性シンポジウム, 2012年10月3-5日, 大阪.
- [20] Zhan Tianzhuo, 徐一斌, 後藤真宏, 加藤良三, 香川豊, "Si 基板上の Ge 薄膜の熱伝導率," 第 33 回日本熱物性シンポジウム, 2012年10月3-5日, 大阪.
- [21] Y. Xu, "NIMS Databases for Materials Selection and Materials Design" (Invited), IUMRS-ICEM2012, September 23-28, 2012, Yokohama, Japan.
- [22] Y. Xu, M. Goto, R. Ryoza, Y. Tanaka and Y. Kagawa, "Structure dependent thermal conductivity of reactively sputtered ZnO thin film," Eighteenth Symposium on Thermophysical Properties, June 24-29, 2012, Boulder, USA.
- [23] Y. Xu, "NIMS Inorganic Materials Database AtomWork," The 3rd Asian Materials Data Symposium, April 15-18, 2012, Okinawa, Japan.
- [24] S. Minamoto, T. Kabashima and Y. Xu, "Prediction of Si/Ge Thermal Boundary Resistance by Non-equilibrium Molecular Dynamics," The 3rd Asian Materials Data Symposium, April 15-18, 2012, Okinawa, Japan.
- [25] 徐一斌, 加藤良三, 後藤真宏, "Dependence of Au/Al2O3 Interfacial Thermal Resistance on Micro-structure of Interfacial Region", 第 21 回日本 MRS 学術シンポジウム, 日本 MRS, 2011年12月20日, 横浜.
- [26] 徐一斌, 加藤良三, 後藤真宏, "Au/サイファイア界面熱抵抗の組織構造依存性", 第 32 回日本熱物性シンポジウム, 日本熱物性学会, 2011年11月22日(予稿集 p. 328-330), 横浜.
- [27] 加藤良三, 徐一斌, 後藤真宏, "周波数領域 THERMOREFLECTANCE 法(法)の開発", 32 回日本熱物性シンポジウム, 日本熱物性学会, 2011年11月21日(予稿集 p. 90-92), 横浜.
- [28] 徐一斌, 加藤良三, 後藤真宏, "反応性スパッタ法で作製した ZnO 薄膜の熱伝導率評価", 日本金属学会 2011 年秋季大会, 日本金属学会, 2011年11月7日(概要集 p. 448), 沖縄.
- [29] Masahiro Goto, Yibin Xu, Akira Kasahara, Masahiro Tosa, "Thermal property of zinc oxide coating films with controlled crystal preferred orientation", 19th European Conference

on Thermophysical Properties, 2011, Aug. 30 (ABSTRACT BOOK p. 374), Thessaloniki, Greece.

[30] Yibin Xu, Ryozi Kato and Masahiro Goto, "Thermal resistance of Au/sapphire interfaces with different micro-structures", 19th European Conference on Thermophysical Properties, 2011, Aug. 28 (ABSTRACT BOOK p. 88), Thessaloniki, Greece.

〔図書〕(計1件)

[1] 徐一斌, 失敗しない熱設計の進め方と放熱部材の選定・活用技術、測定・評価, 第5章 第2節 複合材料熱伝導率の予測, 技術情報協会, 2011.

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

徐一斌 (シュウ イーピン)

独立行政法人物質・材料研究機構・ハイブリット材料ユニット・主幹研究員

研究者番号：30354244

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：