

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560237

研究課題名(和文) ナノ材料・ナノ空間熱計測プラットフォーム

研究課題名(英文) Thermal Measurement Platform for Nanoscience and Nanotechnology

研究代表者

生田 竜也 (Ikuta, Tatsuya)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・技術専門職員

研究者番号：70532331

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：申請者らによって開発されてきたナノ白金熱線センサを基盤として、ナノスケールでの汎用的熱計測技術を構築すべく、まず、CNTをプローブとした走査型熱顕微鏡を開発した。最大の問題点である接触熱抵抗をキャンセルして0.5Kの精度で表面温度を測ることに成功し、CNTの強度から50nm程度の空間精度を維持できた。次に、ナノ構造と熱伝導率を比較可能とするシステムについては、集束イオンビーム照射によってCNTの構造を変化させながら熱伝導率を計測するシステムを開発した。また、白金薄膜を懸架状態にせずに利用する手法についても検討し、表面温度に加えてSi/SiO₂間の界面熱抵抗を測定することができた。

研究成果の概要(英文)：By using nano platinum hot film sensor, which has been studied by our group, versatile systems for measuring nanoscale thermal issues were proposed and tested. A novel scanning thermal microscope was developed using carbon nanotube, which is of temperature resolution of 0.5K and spatial resolution of 50nm. Thermal conductance of an individual carbon nanotube was measured after each local irradiation of focused ion beam, which enables us to explore the heat transfer mechanism in nanomaterials. Supported platinum film was also used to measure both surface temperature and thermal boundary resistance between Si and SiO₂ successfully.

研究分野：マイクロ・ナノスケール伝熱

キーワード：ナノセンサ 走査型熱顕微鏡 カーボンナノチューブ 界面熱抵抗

1. 研究開始当初の背景

半導体の微細加工が進展しナノ材料の開発も活発になる一方でナノスケールの熱物性や伝熱現象に関する理解は不十分なままであった。例えば、カーボンナノチューブ(CNT)の6600W/mKといった異常に高い熱伝導率の解析結果を鵜呑みにした多くのメーカーが複合材などの応用製品を開発しようとしても期待した性能を得られないことが多くあった。CNTの合成メーカー自身も、参考値と注釈はしているものの、その誤った解析データをホームページ提示していることがみられた。そのような状況をもたらした最大の理由はCNTのようなナノ材料の熱物性を計測する手段が身近に無かったからである。ちなみに、欠陥が無くて十分に長い単層ナノチューブの熱伝導率は室温で4000W/mK程度、多層ナノチューブの場合には200W/mKを下回る場合もあるというのが現在における知見である。

2. 研究の目的

ナノスケールでの物性・現象はバルクと異なることが多い。そこで、熱に関する既存の計測技術がナノスケールに対応できていない状況を打破し、多くの研究者・技術者が利用可能なナノスケールの熱計測技術を開発することを本研究の目的とする。具体的には、これまで申請者らによって開発されてきたナノ白金熱線センサ技術を基盤として、ナノ構造との比較が可能なナノ材料熱伝導率計

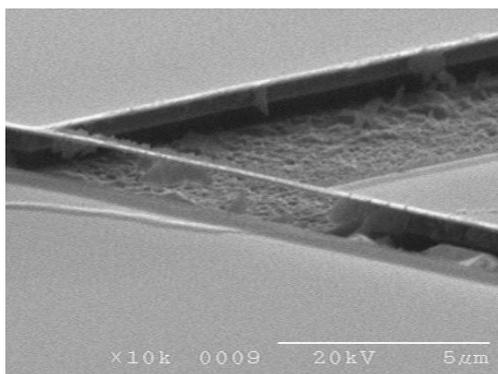


図1 ナノ白金熱線センサのSEM像

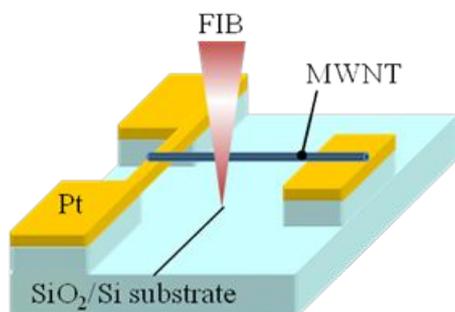


図2 ナノ白金熱線センサに取り付けられたCNTへのFIB照射の模式図

測システムとCNTプローブを用いたナノ空間熱計測システムについて研究する。

3. 研究の方法

ナノ白金熱線センサ技術とはMEMS技術によって厚さ40nmの白金薄膜を幅400nm長さ10μm程度に加工して基板から浮かせた状態にすることでホットフィルムすなわちセンサ兼ヒーターとして用いる技術である。(図1)その中央部と別のヒートシンクとの間に試料をやはり懸架状態で接合してホットフィルムを通電加熱して試料が無い場合との温度上昇の違いを調べることで、長さ数ミクロン程度の材料の熱コンダクタンスを計測することが可能となる。

ナノ材料はバルク材料と異なって、わずかな欠陥によって熱輸送性能が大きく低下したり、合成法に応じて構造が異なることが多いため熱伝導率の再現性が少なかったりする。それらをデータの誤差と許容することなく、熱伝導率をナノ構造と比較できるようにするため、一つはTEMとの連動をもう一つはFIB照射によって構造を恣意的に変化させて熱コンダクタンスの変化を調べる技術(図2)の開発を目指した。

また、このセンサ兼ヒーターは材料の熱伝導率計測だけでなく、プローブを加えることでその先端が接触している非常に微小な範囲の表面の熱計測および加熱を可能とする。そこで、我々はプローブをCNTとすることで耐久性と熱応答性に優れたシステム(CNT熱プローブ、図3)を開発する。さらには、ナノ白金熱線センサを使わずに、耐久性と汎用性のあるナノスケールでの新しい熱計測基盤技術についても検討する。

4. 研究成果

CNT熱プローブについては、最大の問題点である接触熱抵抗をキャンセルするシステムをナノ白金熱線センサに対して開発した。これは、ホットフィルムからCNTへの熱流がゼロとなるように、すなわち非接触の状態と同じ信号となるようにホットフィルムの

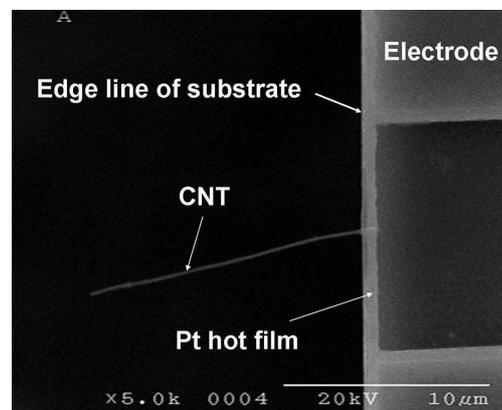


図2 CNT熱プローブのSEM像

通電を制御することで、接触熱抵抗の影響を完全に排除し、かつその時のホットフィルムの温度は表面の温度と等しいことになるため表面温度を特定できるというものである。構築した熱顕微鏡システム(前述のサイズの白金センサに直径 100nm の多層 CNT が 10 μ m 程度基板から突き出るように接合したもの)の温度精度は 0.5K を示し、実験前後での CNT プロブに欠損は見られないことから 50nm 程度の空間精度が得られているものと結論した。

ナノ構造と熱伝導率を比較可能とするシステムについては、TEM と連動させた場合の静電気による白金センサの破壊が解決できなかったために、別の手法として集束イオンビーム(FIB)照射によって CNT の構造を変化させながら熱伝導率を計測するシステムの開発に成功した。それを用いて、多層 CNT における弾道的熱輸送を精度よく計測することができた。

また、ナノ白金熱線センサの脆弱性を根本的に解決するために、基板に蒸着した白金薄膜を懸架状態にせず細線化して利用する手法についても実験的に検討した。カンチレバー先端に作ったそのセンサは、真空環境において熱はカンチレバーとターゲット以外には逃げないという原理に基づいて、フィードバック制御による表面温度の同定に加えて、拡がり抵抗の推算さえできればプロブと表面との間の接触熱抵抗の同定も可能とした。この手法で鍵となるのは接触面積を直径 1 μ m 以下にまで小さくする技術であり、これについても FIB の利用で実現可能となりファンデルワールス力で支配されている Si と SiO₂ 間の界面熱抵抗を初めて正確に計測することに成功した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 6 件)

1. J. Hirotoni, T. Ikuta, T. Nishiyama and K. Takahashi, Measuring the Thermal Boundary Resistance of van der Waals Contacts Using an Individual Carbon Nanotube, Journal of Physics: Condensed Matter, 25, 025301, 2012
2. H. Hayashi, T. Ikuta, T. Nishiyama and K. Takahashi, Enhanced anisotropic heat conduction in multi-walled carbon nanotubes, J. Appl. Phys. 113, 014301, 2013
3. 天野 樹生, 廣谷 潤, 生田 竜也, 西山 貴史, 高橋 厚史, カーボンナノチューブプロブを用いた表面温度計測法, 日本機械学会論文集 (B 編) 79 巻 799 号 pp.390-398, 2013
4. J. Hirotoni, J. Amano, T. Ikuta, T. Nishiyama, K. Takahashi, Carbon nanotube

thermal probe for quantitative temperature sensing, Sensors and Actuators A: Physical, Vol. 199, pp.1-8, 2013

5. H. Hayashi, K. Takahashi, T. Ikuta, T. Nishiyama, Y. Takata, and X. Zhang, Direct evaluation of ballistic phonon transport in a multi-walled carbon nanotube, Applied Physics Letters 104, 113112, 2014
6. T. Miao, W. Ma, X. Zhang, K. Kubo, M. Kohno, Y. Takata, T. Ikuta, and K. Takahashi, Study on the Cross Plane Thermal Transport of Polycrystalline Molybdenum Nanofilms by Applying Picosecond Laser Transient Thermoreflectance Method, Journal of Nanomaterials, Vol. 2014, Article ID 578758, 2014

〔学会発表〕(計 件)

1. J. Amano, J. Hirotoni, T. Ikuta, T. Nishiyama and K. Takahashi, Carbon Nanotube Temperature Profiler using Platinum Hot Film, 23rd International Symposium on Transport Phenomena, 19-22 November 2012, Auckland, New Zealand
2. Y. Yamada, J. Hirotoni, T. Ikuta, T. Nishiyama and K. Takahashi, Quantitative Evaluation of Carbon Nanotube Fin for Chip Cooling, 23rd International Symposium on Transport Phenomena, 19-22 November 2012, Auckland, New Zealand
3. 林 浩之, 生田 竜也, 西山 貴史, 高橋 厚史, 欠陥を有する MWNT の熱輸送特性の評価, 第 50 回日本伝熱シンポジウム, 仙台, 2013/5/29-5/31
4. 林 浩之, 榎崎 将弘, 高橋 厚史, 生田 竜也, 西山 貴史, 高田 保之, Xing Zhang, 集束イオンビームを用いたカーボンナノチューブのフォノン自由行程の制御, 第 51 回日本伝熱シンポジウム, 2014/5/21-5/23, 浜松
5. K. Takahashi, Y. Yamada, T. Nishiyama, Y. Takata, Experimental Investigation of Nanodroplets and nanobubbles (Invited), 8th US-Japan Joint Seminar on Nanoscale Transport Phenomena, July 13-16, 2014, Santa Cruz, CA, USA
6. M. Narasaki, H. Hayashi, T. Ikuta, T. Nishiyama, K. Takahashi, Study on heat conduction of defective MWNT using focused ion beam irradiation, 20th European Conf. Thermophysical Properties (ECTP2014), Aug. 31-Sep. 4, 2014, Porto, Portugal
7. K. Takahashi, Y. Yamada, K. Tsuru, J. Furukawa, T. Ikuta, T. Nishiyama, Thermal Resistance of van der Waals Contacts for Nanoscale Thermometry (Keynote Lecture) Material Science and Engineering (MSE 2014), 23-25 Sept. 2014, Darmstadt,

Germany

8. 榑崎 将弘, 高橋 厚史, 生田 竜也, 西山 貴史, 林 浩之, 高田 保之, 集束イオンビームを用いたフォノン熱伝導の実験的研究, 第 6 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 2014/10/20-10/22, 島根

9. 桑田 祐輔, 高橋 厚史, 生田 竜也, 微小領域における接触熱抵抗の計測に関する研究, 第 35 回日本熱物性シンポジウム, 2014/11/22-11/24, 東京

6. 研究組織

(1) 研究代表者

生田 竜也 (IKUTA TATSUYA)

九州大学・大学院工学研究院・技術専門職員

研究者番号 : 70532331

(2) 研究分担者

高橋 厚史 (TAKAHASHI KOJI)

九州大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号 : 10243924