

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成24年 6月 4日現在

機関番号：14501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2011

課題番号：23656433

研究課題名（和文） 微小部熱伝導率測定による界面熱抵抗の可視化と定量評価

研究課題名（英文） Visualization and quantitative analysis of interfacial thermal barrier by a thermal microscope

研究代表者

田中 克志 (TANAKA KATSUSHI)

神戸大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30236575

研究成果の概要（和文）：これまでのサーモリフレクタンズ法による熱拡散率の測定では点、または面光源で加熱・試料温度の検出を行う方法を取ってきた。この方法は熱物性顕微鏡で一般的な方法であり、試料各部の熱拡散率の測定には適した方法である。本研究では、周期加熱レーザーを直線形状とすることで試料内の伝熱方向を限定するとともに熱波の減衰を抑える工夫をした。これにより周期加熱レーザーの変調周波数を高くすること、および光源から遠く離れた場所まで熱波の伝播を測定することが可能となり、熱拡散率の変化に対する分解能が向上した。さらに熱の伝達方向を制限することで異方性材料における熱拡散率の異方性を測定することも可能となった。現在のところ、粒界の熱抵抗の測定が十分できているとは言い難いが、測定ノウハウの蓄積が進んでおり、粒界の性格の違いによる熱抵抗の測定も可能なレベルに達しつつある。

研究成果の概要（英文）：A point or areal irradiation of a laser light is equipped to heat a specimen and to detect a specimen temperature. This method is suitable for investigating a local variation of thermal properties of the specimen. In the present study, a line focused laser beam is equipped for heating a specimen to suppress an extinction of heat wave and to restrict a direction of propagation. This allows us to measure not only the thermal diffusivity more precisely but also the anisotropy of the thermal properties. At present, the thermal resistance of the grain boundary is not able to measure quantitatively, however, know-hows of the measurement is accumulating.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・構造・機能材料

キーワード：熱拡散率，サーモリフレクタンズ法，熱電材料，粒界熱抵抗

## 1. 研究開始当初の背景

熱伝導が非常に良い、または悪い材料はそれぞれ開発が望まれている材料である。例えば、前者はLSIなどのヒートシンク、後者は断熱材としての応用が見込まれる。また、熱電材料のように熱伝導がその性能に直結する材料もある。熱電材料は熱伝導が小さいほど性能が向上する材料として知られているが、熱電材料では高い電気伝導を維持しながら熱伝導を低下させる必要がある。そのため、内部の空洞化などの高次構造制御によって

熱伝導を低下させることができず、材料そのものの物性が性能を左右する。一方、同じ緻密材の熱電材料においても結晶粒の微細化に伴い電気伝導はそれほど大きな影響を受けないが熱伝導が大きく低下し、結果として熱電性能が向上することが知られている。この現象は結晶粒界における散乱機構の違い、すなわち、電気伝導がフェルミエネルギー付近に限られた比較的大きいエネルギー領域の電子のみによるのに対し、熱伝導は広いエネルギー領域、特に波長の長い低エネルギー

のフォノンが大きな役割を果たしているという違いで定性的に説明されている。このように結晶粒界などの面欠陥の導入が熱伝導の低下に有効であることは知られているが、どのような面欠陥が熱伝導の低下により有効なのか、言い換えると面欠陥の性格による熱抵抗の大きさの違いは全く知られていない。例えば、 $\Sigma 3$  粒界のような対応粒界に比べて高次の大傾角粒界は熱抵抗が大きいことが直感的に予想されるが、それは本当なのか。その違いが評価されたことは無く、違いがあることさえ示されていない。

## 2. 研究の目的

本研究では粒界、異相界面のような面欠陥による熱抵抗を光学式微小部熱伝導率測定によって直接検出し、これまで定性的には常識とされてきた界面による熱抵抗の定量化を目的とする。この目標を達成するために、まず微小部熱伝導率測定法の高精度化を図り、次いで界面の熱抵抗の定量測定を行う。

## 3. 研究の方法

現在用いている光学式微小部熱伝導率測定装置の面欠陥の熱抵抗に対する測定精度を2桁程度向上させる改良を施し、微小な熱抵抗を検出可能な装置とする。

モデル結晶としてバルクの熱伝導率の高いSi, 低いクラスレート化合物を選択し、表面に垂直な粒界を挟む双結晶を作製する。

双結晶の結晶方位を決定し、粒界の性質を決定する。

モデル結晶に対して粒界近傍で熱拡散率の位置による変化の測定を行い、粒界における熱抵抗率を算出する。

異なる性質を持つ粒界における熱抵抗率の比較を行い、粒界の性格と熱抵抗の関係をまとめる。

## 4. 研究成果

周期加熱サーモリフレクタンズ法を用いた光学式微小部熱伝導率測定装置の構成図を図1に示す。装置は光学顕微鏡に加熱用レーザー、検出用レーザーを組み込んだ構成となっている。本研究では、加熱用レーザーには半導体レーザーを用いており、波長は405nm, 出力は35mWで、変調周期は0.1 MHzである。一方、検出用レーザーには半導体励起固体(Diode-Pumped, Solid-State:DPSS)レーザーを用い、その波長は532nm, 出力は0.5 mWで試料の表面温度に影響を与えないように弱くしている。なお、本研究では加熱用レーザーを走査させて検出用レーザーを固定しているが、これは反射光を理想的に検出器で検出するためであり、加熱用レーザーを固定して検出用レーザーを走査させた時と測定結果は変わらない。

レーザーの集光径はともに1  $\mu\text{m}$ 程であり、検出用レーザーの集光径がほぼ空間分解能に相当する。それぞれのレーザー光と試料表面観察用の赤色光はダイクロミックミラーにより適宜合成・分離させている。

検出用レーザーの反射光は1/4波長板と偏光ビームスプリッターによって入射光と分離され、フォトダイオードで電気信号に変換された後、ロックインアンプに入力される。ロックインアンプによって入力信号の強度と位相をオシレーターからの信号を参照信号とすることで測定している。

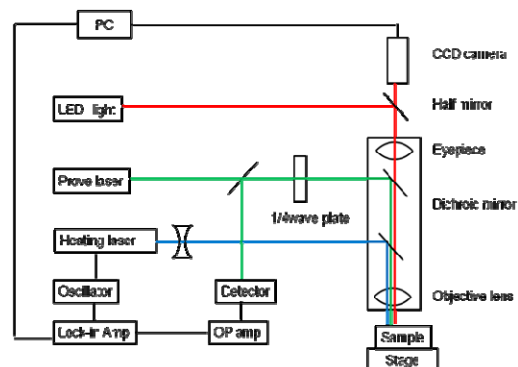


図1 光学式微小部熱伝導率測定装置の構成図

一般に反射光の検出器から得られる信号は、加熱点からの距離が離れるにつれて小さくなる。信号が小さいところでは信号が雑音に埋もれるため強度や位相の測定精度が悪くなる。そのため、信号が十分に大きい場所を使って測定することになるが、測定領域が狭くなることで加熱点と測定点の間の位相差の距離依存性の測定精度が低下するという欠点がある。

そこで本研究では装置の加熱方法を従来の一点加熱方法から試料表面を線状に加熱する方式に変更した。この変更により表面の温度変化が加熱点から離れた場所でも大きくなることで測定範囲を広く取ることが可能となり、より高い測定精度が得られることが期待できる。

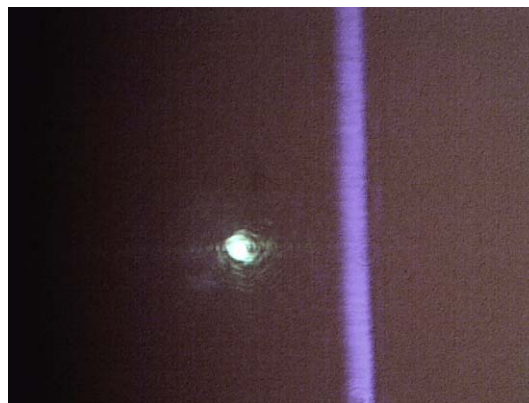


図2 加熱用光源を線状に集光した様子  
このように加熱方法を変更したことにより従来よりも10倍程度遠いところまで熱波が到達することを確認することができた。

一方、このような加熱方法を取った場合に熱波の伝播が熱伝導率とどのような関係になるのかが明らかになっていない。実測の熱波の伝播状況から熱伝導率を求めるためには、その換算表を用意する必要がある。そのため、半無限媒体中を伝播する熱波による試料表面温度の時間変化を数値計算によって求めることとした。

加熱レーザーを照射する試料表面を  $z = 0$  とし、 $yz$  平面に垂直、平面に平行に加熱レーザーが照射されていると仮定する。試料温度が時間とともにどのように変化するのは次の三次元の熱拡散方程式を解くことで求めることができる。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D \frac{\partial T}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D \frac{\partial T}{\partial z} \right)$$

個々のセルの温度変化を考えるために上式の差分化を行う。まず左辺を差分化すると

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{T(t + \Delta t) - T(t)}{\Delta t} = \frac{T_{i,j,k}^{t+\Delta t} - T_{i,j,k}^t}{\Delta t}$$

となる。ここで、 $\Delta x$ 、 $\Delta y$ 、 $\Delta z$  として、それぞれ  $x$ 、 $y$ 、 $z$  座標に対応させる。同様に右辺の第1項を差分化すると

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x} \left( D \frac{\partial T}{\partial x} \right) &= \frac{\partial D}{\partial x} \cdot \frac{\partial T}{\partial x} + D \cdot \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \\ &= \frac{D_{i+1,j,k} - D_{i,j,k}}{\Delta x} \cdot \frac{T_{i+1,j,k}^t - T_{i,j,k}^t}{\Delta x} \\ &\quad + D \cdot \left( \frac{T_{i+1,j,k}^t - T_{i,j,k}^t}{\Delta x} - \frac{T_{i,j,k}^t - T_{i-1,j,k}^t}{\Delta x} \right) / \Delta x \\ &= D \cdot \left( \frac{T_{i+1,j,k}^t - T_{i,j,k}^t}{\Delta x} - \frac{T_{i,j,k}^t - T_{i-1,j,k}^t}{\Delta x} \right) / \Delta x \\ &= D \cdot \frac{T_{i+1,j,k}^t - 2T_{i,j,k}^t + T_{i-1,j,k}^t}{(\Delta x)^2} \end{aligned}$$

となる。2項、3項についても同様に

$$\frac{\partial}{\partial y} \left( D \frac{\partial T}{\partial y} \right) = D \cdot \frac{T_{i,j+1,k}^t - 2T_{i,j,k}^t + T_{i,j-1,k}^t}{(\Delta y)^2}$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \left( D \frac{\partial T}{\partial z} \right) = D \cdot \frac{T_{i,j,k+1}^t - 2T_{i,j,k}^t + T_{i,j,k-1}^t}{(\Delta z)^2}$$

と表せる。セルの形状を立方体だと考えて、

$$h^2 = (\Delta x)^2 = (\Delta y)^2 = (\Delta z)^2$$

とすると、熱拡散方程式は

$$\frac{T_{i,j,k}^{t+\Delta t} - T_{i,j,k}^t}{\Delta t} = \frac{D}{h^2} \cdot \begin{pmatrix} T_{i+1,j,k}^t + T_{i-1,j,k}^t \\ + T_{i,j+1,k}^t + T_{i,j-1,k}^t \\ + T_{i,j,k+1}^t + T_{i,j,k-1}^t \\ - 6T_{i,j,k}^t \end{pmatrix}$$

と表わせる。よって時刻  $t$  の各セルの温度が既知であれば、 $\Delta t$  後の各セルの温度は

$$T_{i,j,k}^{t+\Delta t} = \frac{\Delta t D}{h^2} \cdot \begin{pmatrix} T_{i+1,j,k}^t + T_{i-1,j,k}^t + T_{i,j+1,k}^t \\ + T_{i,j-1,k}^t + T_{i,j,k+1}^t + T_{i,j,k-1}^t \\ - 6T_{i,j,k}^t \end{pmatrix} + T_{i,j,k}^t$$

と与えられる。これらを様々な熱伝導率（一般的には熱拡散率）について計算することで本研究で必要な換算表を作製した。その結果をまとめたものを図3に示す。

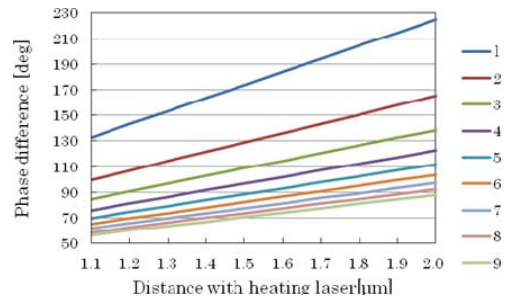


図3 種々の熱拡散率に対して計算された熱波の位相遅れと検出位置との関係

このように線状加熱の場合においても検出距離と熱波の位相の関係には良い直線関係が見られ、測定を行う上で線状加熱は利点が非常に大きいことが明らかとなった。

さらに、この線状加熱によって熱の移動方向を制限した測定を、試料面内で方向を回転させて行うことにより試料面内の熱伝導率の異方性に対しても測定が可能であることが明らかとなった。この測定を、従来から行われている面状加熱による試料奥行き方向

の熱伝導率測定と組み合わせることによって、結晶の熱伝導率の異方性を全て測定することが可能であることを示すことができた。

#### 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 0件)

[学会発表] (計 0件)

[図書] (計 0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

[その他]

ホームページ等

<http://mm4.scitec.kobe-u.ac.jp/>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

田中 克志 (TANAKA KATSUSHI)

神戸大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30236575