

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13719

研究課題名(和文)熱モードスペクトロスコピーによる革新的熱伝導率測定法の開発

研究課題名(英文)Development of a novel method for measuring thermal conductivity of small solids using thermal mode spectroscopy

研究代表者

荻 博次(Ogi, Hirotsugu)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：90252626

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：微小固体の熱伝導率を正確に計測する熱モードスペクトロスコピー法を確立した。熱的に孤立した固体には多くの熱モードが存在し、各モードの緩和時間は試料寸法と熱拡散率だけで決まるため、特定の熱モードだけを選択的に励起してその緩和時間を測定することにより、正確に熱拡散率、そして、熱伝導率が得られる。必要なパラメータは試料寸法だけであり、不確定なパラメータを含まず原理的に精度が高い。また、微小かつ高熱伝導率の試料ほど熱モードが明確に現れるため、従来法の不得意とする領域をむしろ得意とする手法である。

研究成果の概要(英文)：Heat conduction possesses (thermal) modes in analogy with acoustics even without oscillation. Here, we establish thermal-mode spectroscopy to measure thermal diffusivity of small specimens. Local heating with a light pulse excites such modes that show antinodes at the heating point, and photothermal detection at another antinode spot allows measuring relaxation behavior of the desired mode selectively. The relaxation time yields thermal diffusivity. The Ritz method is proposed for arbitrary geometry specimens. This method is applicable even to a diamond crystal with mm dimensions.

研究分野：超音波工学

キーワード：熱モード 熱伝導率 固有値問題 レーザー計測

### 1. 研究開始当初の背景

固体の熱伝導率は実用上極めて重要な量であることは言うまでもない。学術的にもフォノンに深く関わる量であり、物性分野においては物質を特徴付ける重要な性質として長年研究されてきた。近年、デバイスの小型化・高機能化が進む中、ダイヤモンド等の高熱伝導率を有する材料のデバイスへの応用が研究されており、微小かつ高熱伝導率の固体の熱伝導率を正確に計測する必要性が生じている。これまでもレーザーフラッシュ法、サーモフレクタンズ法など多くの熱伝導率測定法が開発されてきたが、それらの全ては、試料の一部に熱源を与え、その伝播を別の部分で検知する、という「熱の伝導現象」を利用したものである。しかし、測定精度を高めるために大きな温度差が必要であり、そのため試料が比較的大きくかつ低い熱伝導率を有する、すなわち試料のピオ数が大きい必要があった。つまり、試料が小さいほど、また、熱伝導率が高いほど従来法の適用は困難となる。したがって、微小サイズの試料しか得られないダイヤモンド等においては、正確な熱伝導率を計測することは従来法では非現実的である。

そこで、全く新しい概念に基づいた熱モードスペクトロスコピー (Thermal mode spectroscopy: 以下 TMS) という手法を確立し、これを利用した熱伝導率測定法を構築する。熱的に孤立した固体に瞬間的に熱源を加えると、様々な熱モードが励起され、各モード固有の温度分布および緩和時間をもって温度平衡に達する。(温度の時間変化は指数関数にしたがい、その指数係数の逆数が緩和時間である。) 各モードの緩和時間は試料寸法と熱伝導率だけで決まるため、特定の熱共振モードだけを選択的に励起してその緩和時間を測定することができれば、熱伝導率が得られる。必要なパラメータは試料寸法だけであり、不確定なパラメータを一切含まず原理的に精度が高い。また、微小かつ高熱伝導率の試料ほど(すなわち、ピオ数が小さいほど)熱共振現象がより明確に現れるため、従来法の不得意とする領域をむしろ得意とする手法となり得る。

### 2. 研究の目的

TMS という新しい概念を用いて微小固体の熱伝導率を計測する手法を構築する。孤立した固体に外部から局所的・過渡的に熱源を与えると、固体内の平均温度は単調に増加して一定値に到達するが、実は、内部の温度は、様々な熱モードの温度分布重ね合せにより表現される。そして、個々のモードの温度分布と緩和時間(熱平衡に達するまでの時間)は、固体の形状と熱伝導率に依存して異なる。つまり、1つの熱モードだけを励起し、観測することができれば、そこから、熱伝導率を決定することができる。極短パルス光を用いて固体を加熱し、局所温度変化を測定するこ

とにより、この原理を具現化し、新しい高精度熱伝導率計測法を確立する。また、理論的に熱モードの性質を解析する。具体的には TMS 法について摂動論により理論的検討を行い、その優位性を理論的に検証する。

### 3. 研究の方法

熱モードという概念を応用した研究は世界的に見ても存在しない。我々は熱モード現象を定式化し、これを微小試料の熱伝導率計測へ応用するという、新しい高精度熱伝導率測定法を確立する。直方体試料に対しては、熱モードは解析的に議論することができる。熱伝導方程式の一般解は、波数ベクトルにより表される空間振動解と緩和時間によって表される時間減衰解の積により表現される。微小固体の場合、熱モードの緩和時間は、試料境界面での外部との熱輸送に要する時間よりも十分短いため、断熱境界を仮定することができる。この場合、固有値に相当する独自の緩和時間を有する様々な熱モードが得られる。つまり、ある特定のモードの緩和時間を独立に計測することができれば、熱拡散率、そして熱伝導率が決まる。通常は、熱モードは過度に重畳して発生するため、独立に1つのモードだけを計測することは困難である。しかし、各モードの温度分布を利用することにより、選択的に意図したモードの緩和時間を計測することを可能とした。

このような計測は、図1に示す光学系により可能とした。Nd/YAG パルスレーザー(波長 1064 nm)を用いて局所加熱を行い、局所温度の検出にはパルス幅 150 fs のフェムト秒パルスレーザー(波長 800 nm)を用いた。温度上昇とともに物質の反射率が変化する現象(熱光学効果)を利用し、検出光の反射率変化として温度変化を評価した。励起光と検出光を試料表面に集光し、これらの位置を変化させて検出光の反射率の時間変化を計測し、その指数係数から緩和時間を決定した。観測したモードが特定されている場合、熱拡散率が決まり、密度と比熱を用いて熱伝導率が求まる。

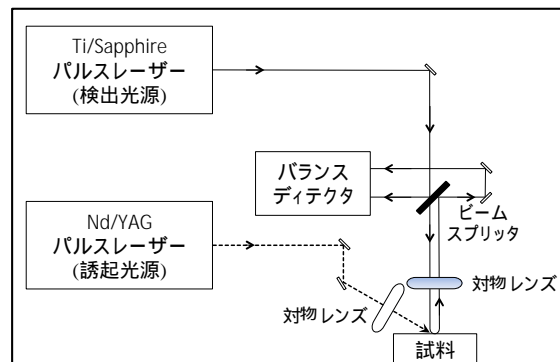


図1 TMS の光学系の例

#### 4. 研究成果

3 辺の寸法が 2.5 mm, 2.4 mm, 0.55 mm の単結晶ダイヤモンドに対し、加熱点と検出点を変えて温度変化を計測した。加熱・検出箇所に依存して、緩和時間が変化する結果が得られ、モード選択原理が機能することが判明した。ダイヤモンドほど高い熱拡散率を有する物質において、この微小サイズで熱伝導率を計測することは他の手法では極めて困難であることから、TMS の利点が明確になった。さらに、各辺の寸法が 1 mm 程度の Ni, Cu, Al, ダイヤモンド直方体試料に対して(100)モードの緩和曲線を測定した。熱拡散率の高い物質ほど緩和時間が短く、この手法により熱拡散率計測が可能であることが明確となった。実際、アルミニウム、銅、ニッケル、ダイヤモンドに対して計測した緩和時間から熱伝導率を決定した結果、報告値と良く一致する結果を得た。

さらに、試料形状が直方体以外の任意形状に対してもリッツ法による緩和時間計測法を確立し、任意形状固体に対する TMS を可能とした。

次に TMS 法について摂動論により理論的検討を行い、以下のような顕著な優位性を確認することができた。まず、TMS 法は従来法では計測が困難な、サイズが小さくかつ熱伝導率が高い試料に対して適用でき、むしろ高精度に測定可能であることを確認した。それから測定の際に必要な表面膜と試料との間の熱抵抗の影響が、膜の厚み寸法の 1 次のオーダーに現れないという意味で他の計測法と全く異なっており、温度計測の際の適用性に極めて大きなメリットがあることが確認できた。さらに TMS 法は(1)温度変化計測時にはすでに試料内部の温度変化は極めて小さくなっており(本研究で行った実測例では 0.03K 程度)、(2)たとえ熱伝導率に温度依存性を有していたとしても、その影響は最も減衰率が小さいモードには影響せず、その減衰率は厳密に温度依存性がない場合と一致することから、定常状態での温度・圧力で指定された熱伝導率を真に高精度に測定可能な唯一の手法であることが判明した。

それから、熱伝導率に方向性を有する直方体物質の減衰率、熱モード、トータルとしての温度変化についての解析並びに数値解析を行った。理論的に予測される通り、これらの結果はある方向の無次元厚み  $L$  を、その方向の無次元拡散係数の  $1/2$  乗で再規格化された無次元厚み  $L^*$  を有する方向性を持たない熱伝導率の試料を用いた場合と一致するという結果を得た。TMS 法はこれまで方向性を持たない試料に対して適用して、その効果を確認してきたが、これらの結果は方向性を有する試料に対しても TMS 法が有効であることを示唆するものである。

さらに、ダイヤモンド層を同じ厚みの別の保護物質で上下を挟んだ三層サンドイッチモデルの数値解析を行い、熱モードに対する

上下物質の物性値の影響を調べた。その結果、ダイヤモンド単独で実現される温度減衰率を実現しようとする場合、上下を熱拡散係数が小さい物質で挟むのではなく、ダイヤモンドの物性値に対する比で定義された体積(容積)比熱比もしくは厚みも考慮した熱容量比の小さい物質で挟む必要があることがわかった。この比率を 1 程度で固定して、保護物質の相対熱拡散係数を小さくする数値計算を行うと、 $L^*$  の減少に伴って、温度減衰率(固有値)は単調減少し、 $0+$ でダイヤモンド単独の温度減衰率には決して収束しない。すなわち上下の保護物質の  $L^*$  が 0 である場合と、0 に近づけた場合とで減衰率が異なるという特異性を有することがわかった。なお、これらの成果の一部は京都大学学術情報メディアセンターのスーパーコンピュータを利用して実施した。

#### 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 3 件)

1. H. Ogi, T. Ishihara, H. Ishida, A. Nagakubo, N. Nakamura, and M. Hirao, "Thermal mode spectroscopy for thermal diffusivity of millimeter-size solids", Physical Review Letters 117, 195901, (2016).
2. H. Ishida and H. Ogi, "Perturbation theories behind thermal mode spectroscopy for high-accuracy measurement of thermal diffusivity of solids", Philosophical Magazine, in press (2018).
3. 荻博次, "熱モードスペクトロスコーピーによる微小固体の熱拡散率計測～音の共振に似た熱モードという現象～", 生産と技術 in press (2018).

{ 学会発表 } (計 2 件)

1. 荻博次, 石田秀土, 石原達也, 平尾雅彦, "固体の熱モードの選択的励起", 日本物理学会 2016 年秋季大会(平成 28 年 9 月 15 日(木) 於 金沢大学)
2. 石田秀土, 荻博次, 金里征治, 河原源太, "熱モードスペクトロスコーピーによる熱拡散係数測定に関する数値的検証", 日本物理学会第 72 回年次大会(平成 29 年 3 月 18 日(金)~21 日(月) 於 大阪大学豊中キャンパス)

{ 図書 } (計 0 件)

{ 産業財産権 }

出願状況（計0件）

取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

[http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2016/20161031\\_6](http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2016/20161031_6)

## 6．研究組織

### (1)研究代表者

荻 博次（OGI, Hirotsugu）

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：90252626

### (2)研究分担者

石田 秀士（ISHIDA, Hideshi）

大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教

研究者番号：80283737

### (3)研究分担者

中村 暢伴（NAKAMURA, Nobutomo）

大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教

研究者番号：50452404