

平成30年 8月27日現在

機関番号：17104

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K18031

研究課題名(和文) 表面フォノンポラリトンによる薄膜の熱伝導率促進

研究課題名(英文) Enhancement of thin film thermal conductivity by surface phonon polaritons effects

研究代表者

トランシャン ローラン (Tranchant, Laurent)

九州工業大学・大学院工学研究院・特任助教

研究者番号：50754785

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：解析で予測されている表面フォノンポラリトンによる熱輸送促進を示すため、微細加工技術により、二酸化シリコンの極薄自立薄膜を作製し、3オメガ法により横方向熱伝導率を測定した。薄膜の熱伝導率は、バルク状材料よりも大きな値を示したが、100nmより薄い薄膜を生成できず、明確な表面フォノンポラリトンの熱輸送促進を示すまでには至らなかった。しかし、窒化シリコン膜生成との積層薄膜を作製することで、二酸化シリコン極薄膜を生成する手法、細線加熱による横方向熱伝導率を測定するノウハウを確立し、さらなる極薄膜を生成して表面フォノンポラリトンによる熱輸送促進を確認するための一連の手法を確立した。

研究成果の概要(英文)：We fabricated Silicon dioxide free standing thin films with 100-200nm thickness by using standard micro-fabrication processes. The in-plane thermal conductivities of the thin films were measured by 3 omega method, and their thermal conductivities (1.5-2.0 W/(m·K)) were slightly higher than that of a bulk material (1.38 W/(m·K)). However, the enhancement of thermal conductivity by surface phonon polaritons were not clearly confirmed because the thickness of the fabricated films was thicker than 100nm in the present study. The enhancement of heat conduction by surface phonon polaritons were predicted for only thin films with less than 100nm thickness. We established the method for the research about thermal transport enhancement in thin film by surface phonon polaritons.

研究分野：熱工学

キーワード：熱伝導 薄膜 表面フォノンポラリトン 3オメガ法

1. 研究開始当初の背景

3次元集積電子回路の高密度化を難しくする要因に薄膜の低い熱伝導率が引き起こす熱問題が挙げられており、薄膜の熱伝導率向上は重要な課題となっている。しかし、超薄膜化した場合、相対的に表面の効果となり、表面のもつ特性を考慮に加えた正確な熱輸送現象の把握が必須となる。表面近傍に局在する電磁波である表面フォノンポラリトン(SPP: Surface Phonon-Polaritons)を図1に示す。

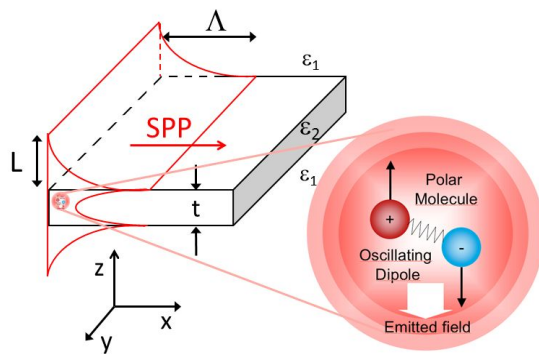


図1 薄膜表面を伝播する SPP の概略図 .表面から距離 L で減衰する表面波で接線方向に距離Λで伝播する .

フォノンポラリトンは、光学フォノンとフォトンがカップリングした電磁波であり (N.W. Ashcroft and N.D. Mermin, 1976) , 中赤外領域で存在することが実験で確認されている . SPP がプランクの黒体熱ふく射輸送よりも3桁も大きいエネルギー輸送密度を持っていることも知られている (K. Joulain et al., 2005) . SiO₂ は SPP が伝播する誘電体であるため、国内外問わず複数の研究グループが膜厚 200 nm 以下の薄膜で、面方向の熱伝導率が増加することを予測してきた (D.-Z. A. Chen et al., 2005; J. Ordonez-Miranda, L. Tranchant et al., 2013) . これは誘電体薄膜を伝播する電磁波をマクスウェルの式を解いて得られた結果であり、エネルギー輸送量を熱伝導率に換算すると図2となる . 膜厚 200nm 程度では、ほとんど無視できる SPP による熱輸送は、膜厚 30 nm で 2.5 W/(m·K) と

なり、500 K では 5 W/(m·K) 以上にもなる . 上記のように定量的な熱伝導率の増加が予想されているものの、自立薄膜生成の難しさや熱伝導率測定との2重の難しさから実験による検証が進められていない .

2. 研究の目的

解析で予測されている表面フォノンポラリトンによる熱輸送促進を確かめるため、SiO₂ 自立膜を作製し、熱伝導率を測定することが本研究の目的である . 図2に示されるような薄膜化を通じた熱伝導率促進、熱伝導率の温度依存性を示すことが具体的な目標となる .

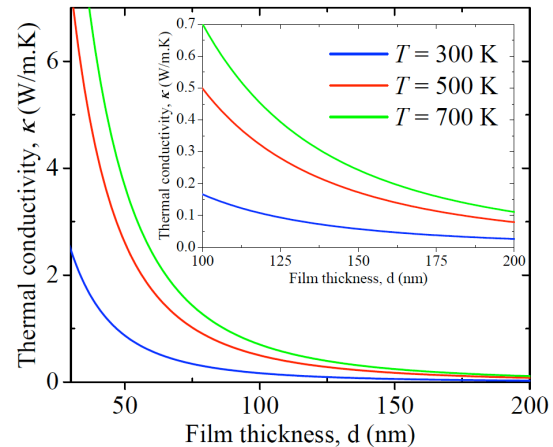


図2 SiO₂ 自立膜の SPP に起因する熱伝導率 (J. Ordonez-Miranda, L. Tranchant et al., 2013)

3. 研究の方法

SiO₂ 自立薄膜の膜厚を変えて製作し (50 nm ~ 5 μm) , 3ω 法により熱伝導率を測定した . 薄膜上に生成した細線で加熱し、加熱量 I²R (電流 I、電気抵抗 R) と温度上昇 θ_{ave} から熱伝導率 λ を測定できる . 式(1)の変数は自立膜の幅 a、長さ b、厚み t_m であり、n は初期条件をフーリエ級数展開した際に必要な整数である .

$$\theta_{ave} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{I^2 R (1 - \cos(n\pi))^2}{2\lambda t_m (n\pi)^3} \tanh\left(\frac{n\pi a}{b}\right) \quad (1)$$

さらに非定常加熱による温度振幅 θ_{AC} を用い

ると熱拡散率を計測できる。

$$|\theta_{Ac}| = \frac{2RI_0^2}{\lambda tb} \left| \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\tanh(\Delta_{2n+1}a)}{\Delta_{2n+1}[(2n+1)\pi]^2} \right| \quad (2)$$

それぞれの温度変化は、あらかじめ較正した加熱用細線の電気抵抗の温度依存性を用いて測定した。

4. 研究成果

自立膜薄膜生成プロセスの概略を図3に示す。自立薄膜となるSiO₂膜を熱ドライ酸化法を用いて成膜する(図3(a))。次にスパッタリングでAlを成膜し、フォトリソ技術を用いてパターンニングし、エッチングしてAl細線を作製する(図3(c))。このAl細線で自立薄膜を加熱するとともに、電気抵抗の温度依存性を用いて温度測定する。保護膜としてSiN_x膜をPECVDで表面に生成し(図3(d))、さらに水ガラスを塗布して熱処理することでSiO₂膜を成膜、その上に再度SiN_x膜を成膜して、表面の保護膜とする(図3(e))。SiO₂膜とSiN_x膜の膜厚は、ウェ

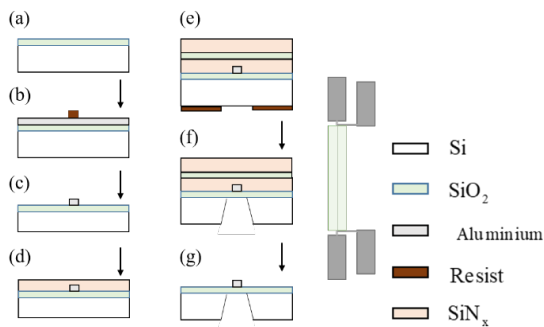


図3 サンプル作製プロセス概略

ットエッチング後に自立薄膜が内部応力で破壊されないよう応力緩和を考慮して膜厚を決定している。TMAHを用いて裏側からSi基板をエッチングし、自立薄膜を作製する(図3(f))。最後に表面保護膜をRIE(Reactive Ion Etching)によって除去する(図3(g))。自立薄膜の膜厚が300,150,100nmとなるよう成膜した。金属細線の膜厚は100nmで幅は6μmである。

熱伝導率測定では、対流の影響をなくすためターボ分子ポンプにより、およそ3×10⁻³Pa

の真空状態とした。定常法による測定結果を図4に示す。横軸に印加電力、縦軸に定常の温度上昇をプロットしており、式(1)より熱伝導率が得られる。図5に自立薄膜の膜厚が290nmの温度振幅の測定結果および解析結果を示す。熱伝導率、熱拡散率をフィッティングパラメータとしてプロットした線は、いずれのグラフでもよく実験値を説明している。本研究を通して、極薄膜の横方向熱伝導率測定ノウハウを確立した。次に膜厚を制御して作製したサンプルごとに得た熱物性値を図6に示す。SiO₂バルクの熱伝導率及び熱拡散率はそれぞれ1.38W/(m·K)、0.85mm²/sである。測定結果はバルク値よりも少し大きい値となり、

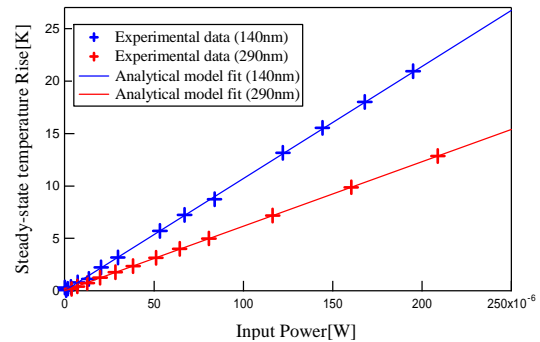


図4 定常法熱伝導率測定結果

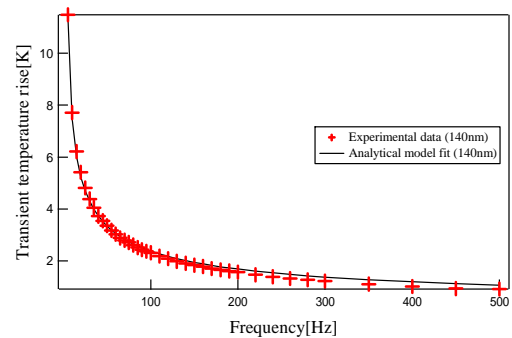


図5 温度振幅と加熱周波数測定結果

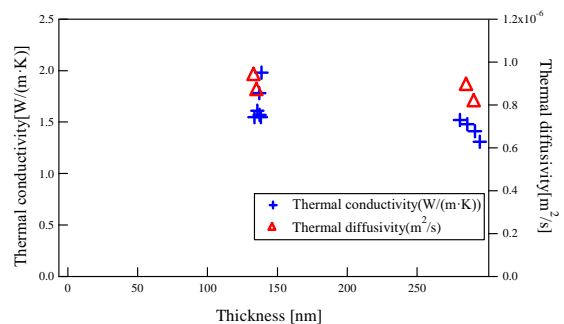


図6 極薄膜の横方向熱伝導率と熱拡散率測定結果

やや膜厚が薄いほうが熱伝導率がやや高くなる傾向がみられた。ただし図2の解析結果にあるように、SPPによる熱輸送促進は、100nm以下の膜厚で顕著になるため、今後は自立膜の更なる薄膜化を試みて、測定する必要があると考えている。

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)

[学会発表](計 11 件)

Satoki Hamamura, Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Enhancement of the thermal properties of suspended glass thin films due to long range surface phonon-polaritons, 5th International Symposium on Applied Engineering and Sciences, 2017年11月14日, Putra, (マレーシア)

濱村聡希, 矢吹智英, Laurent Tranchant, 宮崎康次, MEMS センサーを使用した酸化シリコン自立薄膜の熱伝導率測定, 第38回熱物性シンポジウム, 2017年11月7日, つくば(日本)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Measurement of the enhanced thermal transport and propagation of surface phonon-polaritons for suspended silica thin films, 9th US-Japan Joint Seminar on Nanoscale Transport Phenomena, 2017年7月2日, Tokyo(日本)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Experimental investigation of the enhanced thermal conductivity of silica suspended thin films due to long range surface phonon-polaritons, Nanorad2017, 2017年6月25日, Daejeon(韓国)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Enhancement of the Thermophysical Properties of Suspended Silica Thin Films Supporting the Propagation of Surface Phonon-Polaritons, 2017 MRS Spring meeting, 2017年4月17日, Phoenix(アメリカ)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Taihei Matsumoto, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Experimental measurement of the enhanced in-plane thermal conductivity of silica thin films due to surface phonon-polaritons, Asian Conference on

Thermal Sciences 2017, 2017年3月26日, Jeju(韓国)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Taihei Matsumoto, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Enhancement of Thermal Properties of Silica Thin Films due to Long Range Surface Phonon-Polaritons, International Symposium on Micro-Nano Science and Technology 2016, 2016年12月16日, Tokyo(日本)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Experimental investigation of thermophysical properties enhancement of silica thin films due to surface phonon-polaritons, Japan-Taiwan Workshop on Mechanical and Aerospace Engineering 2016, 2016年11月27日, Tokyo(日本)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Taihei Matsumoto, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Experimental detection of enhanced thermal properties of glass thin films due to long-range surface phonon-polaritons, International Forum on Heat Transfer, 2016年11月2日, Sendai(日本)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Taihei Matsumoto, Sergei Gluchko, Thomas Antoni, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Experimental detection of the enhanced longitudinal propagation of surface phonon-polaritons on SiO₂ thin films, The 11th Asian Thermophysical Properties Conference, 2016年10月2日, Yokohama(日本)

Laurent Tranchant, Jose Ordonez-Miranda, Taihei Matsumoto, Sergei Gluchko, Thomas Antoni, Sebastian Volz, and Koji Miyazaki, Experimental measurement of the enhancement of the in-plane thermal conductivity of SiO₂ thin films due to surface phonon-polaritons, WE-Heraeus-Seminar: Heat transfer and heat conduction on the nanoscale, 2016年4月10日, Bad Honnef(ドイツ)

6. 研究組織

(1)研究代表者

トランシャン ローラン (TRANCHANT, Laurent)

九州工業大学・大学院工学研究院・特任助教

研究者番号: 50754785