

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月5日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22360085

研究課題名（和文） 表面フォノンポラリトンによるマイクロ・ナノ構造物の熱伝導特性計測

研究課題名（英文） Measurement of heat transfer in micro/nano structures mediated by surface phonon polaritons

研究代表者

金 範ジュン (KIM BEOMJOON)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：60334356

研究成果の概要（和文）：

本研究の目的は、今まで知られてなかった、特にアモルファスシリコンナノチューブ（ナノ構造物）において表面フォノンポラリトン（フォノンと電磁波とのカップリングによってできる表面に局在した縦波結合波）に起因した熱伝導への変換特性に関する新しい物理現象を初めて数値解析及び実験的に検証しようとするものである。物体表面を伝播する表面フォノンポラリトンの伝搬長さに着目し、これを大きくするウェーブガイドの作成と加熱実験を行った。表面フォノンポラリトンによる面内熱輸送量増加を目的とし、ウェーブガイドとしてその直径がマイクロスケールであるパイレックスチューブを、また MEMS プロセス技術を利用して Si ウェハ上に SiO₂ 薄膜を作成した。分散関係と伝搬長さの解析結果をもとに各ウェーブガイドを加熱、表面温度を赤外線温度計で計測することで表面フォノンポラリトンの面内熱輸送に対する影響の評価を試みた。

研究成果の概要（英文）：

Surface Phonon Polaritons (SPPs) are surface waves produced by the interaction of atomic vibrations with the electromagnetic field. Those waves are strongly enhanced when they couple between themselves. We aimed at designing a glass microtube that allows for strongly enhancing the coupling between SPPs. Because SPPs are monochromatic waves in the Infrared range, this microstructure should be an efficient monochromatic source just based on simple heating and it might produce abnormal heat conduction phenomena related to ballistic regimes of transport and to wave confinement. The modeling of the tube consists in solving the TM Maxwell equations in the approximation of small wall thickness and small outer diameter compared to the polariton wavelengths. A simplified polynomial solution was obtained and solved numerically. The experimental set-up for proving abnormal heat conduction consists in sticking a glass capillary sample on a heating Pt wire on one end and measuring the temperature on the other end. The phase between both signals provides the thermal diffusivity.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	9,700,000	2,910,000	12,610,000
2011年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
2012年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
総計	14,800,000	4,440,000	19,240,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：マイクロ・ナノデバイス、ナノチューブ、表面フォノンポラリトン、ナノスケール伝熱

1. 研究開始当初の背景

マイクロ・ナノスケールデバイス作製技術の進展の速さには眼を見張るものがあり、その代表長さがナノスケールのデバイスにおける熱輸送機構の解明に大きな関心が寄せられてきた。そのパフォーマンスを十分に発揮するためには熱設計が重要となるからである。マイクロ・ナノスケールデバイス伝熱問題において、巨視的なスケールとは異なる特異な現象が見られる。

近年の半導体微細加工技術の進歩は、超格子、量子細線や量子ドットなど、自然界には存在しない新しい工学材料を提供してきて、そのような系におけるフォノンの性質は、バルク物質のものとは異なり、構造的異方性や閉じこめ効果によって大きく変化する。特に、個体物質の熱伝導現象は、巨視的に記述されて来たが、ナノスケール物質は、電気的特性のみならず熱伝導に対しても、バルク物質では起こり得ない特異な量子的振舞い、即ち電子やフォノンのバンド構造に起因する特異な性質を示す。例えば系のサイズが熱輸送のキャリアであるフォノンの平均自由行程よりも小さい時フォノン弾道輸送が生ずる。そこで、近年、フーリエの法則が適用できないナノ構造物の熱伝導現象に対し、分子動力学法やモンテカルロシミュレーション等を用いた解析、フォノン輸送（フォノンの弾道輸送）を解くことで、ナノサイズ効果の熱伝導に与える影響を探求しようとする研究が非常に注目を浴びている。最近では、理論だけではなく実験でもナノ構造によって物性の変化することが確認され、例えば熱電半導体の効率が超格子構造により、これまでの物性の壁を越えて2倍以上も改善されることが分かった[1]。極性物質に周期的な微細構造を導入することによって、極性物質（SiC）からなる熱源によって放射された場が、1万倍以上も強められ、10から100nm程度の距離では部分コヒーレントになることが明らかにされた。コヒーレントな放射の原因は、回折格子による、表面のフォノンのポラリトン（SPP）の回折にある[2]。表面フォノンポラリトンとは、フォノンと電磁波とのカップリングによってできる表面に局在した縦波結合波でのことである（図1）。一方、走査型熱顕微鏡（SThM）、微小な温度センサーや近接場顕微鏡等を用いて局所領域の温度分布を

測定する研究も行われている。温度分布ではなく、微細構造物（薄膜、超格子構造を持つ薄膜、カーボンナノチューブ）の熱伝導率を測定する研究も行われている。

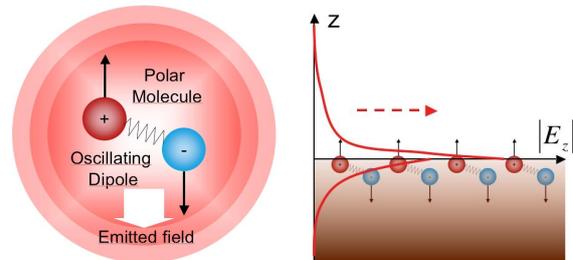


図1. 表面フォノンポラリトン（2媒質間界面を伝播する表面フォノンポラリトンの概念図である。 E_z は界面垂直方向の電場の大きさである。界面から距離をとるに従い、その大きさが減衰する。）

2. 研究の目的

エネルギー変換素子、微細化が進む電子デバイスにおいても電子と格子振動（フォノン）の相互作用を考慮した熱伝導解析が不可欠であり、ナノスケールの熱伝導特性は、幅広い分野で必要となる物理現象の一つである。物質固有と信じられてきた熱的・電気的な物性値ももはや一定ではなく、マイクロ結晶の薄膜、ナノ構造によって変化し、その応用として熱エネルギーと電気エネルギーを相互に変換できる熱電半導体の変換効率が改善されることが理論によって導かれた。そして、ナノ構造を利用して熱転送現象を積極的に操作しようとする研究が盛んになってきた。そこで、本研究の目的は、今まで知られてなかった、特にアモルファスシリコンナノチューブ（ナノ構造物）において表面フォノンポラリトンに起因した熱伝導への変換特性に関する新しい物理現象を初めて数値解析及び実験的に検証しようとするものであり、ナノ物理領域において非常に新しく興味深い分野である。

本研究で目指す成果によって、ナノ構造物での熱伝導率だけでなく熱的・電気的な物性を同時に求めることができ、ナノ構造の熱半導体の性能向上や将来ナノ電子デバイスの発熱に関する解決策にもなれると期待できる。

3. 研究の方法

熱伝導問題において表面フォノンポラリトンは主として微小な隔たりを持つ面間（近接場）の輻射熱の増幅に応用されている。し

1 A.Majumdar, Thermoelectricity in Semiconductor Nanostructures, *Science* 303, 777 (2004)

2 J.Greffet, et al., Coherent emission of light by thermal sources, *Nature* 416, 61 (2002)

かしながら今日まで連続平面上の表面波によるエネルギー輸送特性は解明されていない。

本研究では、面内(In-plane) 方向の熱輸送量を増幅させるために表面フォノンポラリトンを利用する。表面フォノンポラリトンの伝搬長さ(Propagation length) とライフタイム(Life time) を増大するウェーブガイド(Waveguide) を作製し、加熱実験を行う。ウェーブガイドの表面温度を赤外線温度計により測定し表面フォノンポラリトンモード相互作用による熱輸送量増加と、結果として予想される温度場への影響と物質の熱伝導率の改善を実証する。

(1) 連携研究者のヴォルツセバスチャン氏によって、表面フォノンポラリトンの寄与を数値モデリングと解析を通して明らかにし、特に“酸化シリコン”にての現象を実験と理論的立場から探求するため、寸法や形状条件を提案していた。即ち、マイクロからナノ構造のある寸法において表面フォノンポラリトンによる熱伝達性が大きくなることを数値解析で示した。

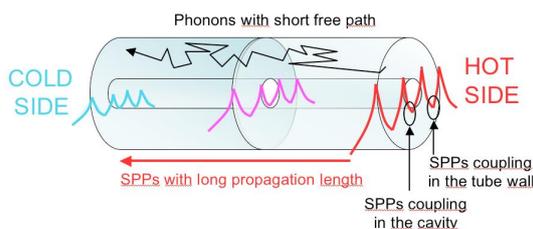


図2. マイクロチューブの表面フォノンポラリトンの伝搬長さへの模式図。

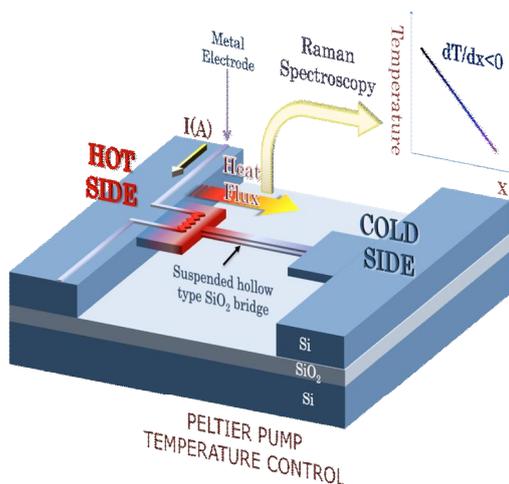


図3. マイクロ・ナノ構造物を用いた実験計画図。

(2) 実験的な検討のために、新規製法によって酸化シリコンナノ及びマイクロチューブ構造物、シリコンナノワイヤーのヒータを製作し、その温度計測のシステムを構築す

る。数値計算にて予想された表面フォノンポラリトンの影響によるマイクロ・ナノ構造物の熱伝導特性を実測することを目指し、先ず観測装置の構築及びその計測のキャリブレーションを行う。より正確な熱伝導特性の測定のために、観測は真空中で行う必要があり、真空容器内の構造物の温度変化を計測する。本実験では赤外線透過する CaF2 ガラス通じて、放射される赤外線を観測する手法を採用する。

(3) 真空チャンバーと赤外線サーモ顕微鏡、カーボンコーティングがなされた状態のガラスマイクロチューブ等の実験システムを構築して、マイクロヒータで加熱し、その熱伝達特性を計測した。ヒータ、熱電対の温度を熱電対・ヒータ抵抗による測定温度と、サーモ顕微鏡による計測温度に関するキャリブレーションを行った。温度計測のため真空チャンバーや赤外線放射顕微鏡等、計測システムを構築する際、材質による放射率の計測、赤外線の減衰の影響の検証や真空度の改善で、マイクロスケールにおいての新規温度計測システムには予定より安定なデータが得られなく、さらにキャリブレーションの必要が生じた。マイクロやナノチューブ構造物の熱伝導率を計測する実験にはこの予想外の不具合をしっかりと解決する必要があり、装置キャリブレーションを行い、ヒータと共にマイクロチューブの新規製作をした。

4. 研究成果

マイクロ・ナノチューブ構造の寸法によって、表面フォノンポラリトン(SPP)が heat flux における影響をモデリングで明らかにしてから、新に酸化シリコンマイクロチューブを製作し、分散関係と伝搬長さの解析結果をもとにパイレックスウェーブガイドの加熱実験と温度測定を行った。

温度測定に使用した赤外線温度計の測定誤差が $\pm 4.0^{\circ}\text{C}$ であり温度場に対する SPP による熱輸送量増加の影響が、未だ定量的な評価はできないが微弱であると予想されているため、得られた温度値の振れが SPP の効果によるものなのか測定誤差や外乱等によるノイズによるものであるのか判断することがまだ困難であった。仮に温度場に影響が出ておりかつ遠方場からその効果が測定可能としても、赤外線温度計でウェーブガイド表面の正確な温度を測定することは非常に困難である。物体から放射されるエネルギーが面の形状や方向に依存し、正確な放射率決定が難しいからである。実際に得られたウェーブガイド表面温度は温度の振れが大きく、温度勾配の傾向こそ COMSOL による計算との類似性が見られるが、SPP の効果には言及できない。SPP モード相互作用による増加したエネルギーは物体表面に滞在し、これを遠方場

より測定できるとの立場で加熱実験と温度測定を行ったが、近接場からの温度測定も行うべきである。そして、熱源としてもマイクロ電極による接触形ヒータではなく、レーザーによる加熱をすることで、真空チャンバー内のシステムも変更した。

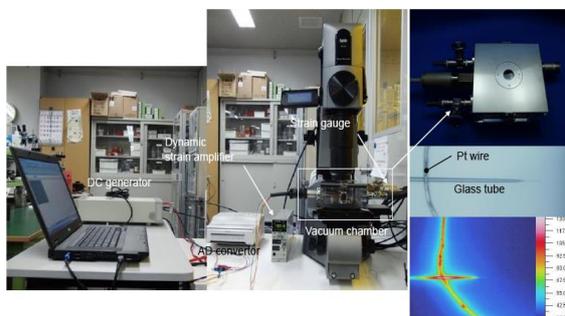


図4. 実験装置。

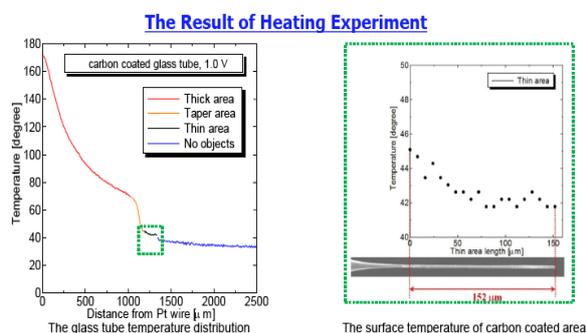


図5. マイクロガラスチューブの加熱実験。

一方、SiO₂ 薄膜における熱伝導率と熱輸送量の SPP の寄与に関する数値解析結果にて、その効果が表れ始めるのは膜厚 1.0 μm 未満の領域であった。本実験ではウェーブガイド中真空層の SPP モード相互作用を狙っている。膜厚 5.0 nm の SiC 薄膜において薄膜垂直方向への SPP 侵入深さが 100 μm オーダーとの報告もあり、系やサイズは違えど表面波が存在する場合、振動モードの相互作用は生じていると考えている。SPP による熱輸送量の増加を達成できている可能性はあるがこれを定量的に評価することはできない、というのが現状である。最終的な目標は SPP モードにより物質の熱伝導率を改善することであったが、ウェーブガイドの熱伝導率の測定法そのものも模索中である。MEMS プロセスにより Si ウェハ上に厚さ 100 nm 未満の SiO₂ 薄膜を作製し、真空チャンバー内での加熱実験を念頭にプロセスを進めた。解析例によると膜厚 100 nm 未満の時ウェーブガイド上の SPP モードが相互作用し、また Anti-symmetric モードの伝搬長さが大きくなることで熱輸送量が増加する。現時点で準備できる装置で、かつ SPP の効果が得られる可能性があるということでチューブ状ウェーブガイド加熱実験と同時並行で実験を進

めた。

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)

①J. Ordonez-Miranda, Laurent Tranchant, Takuro Tokunaga, Beomjoon Kim, Bruno Palpant, Yann Chalopin, Thomas Antoni, and Sebastian Volz: Anomalous thermal conductivity by surface phonon-polaritons of polar nano thin films due to their asymmetric surrounding media, *Journal of Applied Physics*, Vol. 113, pp. 084311-8, 2013, 査読有

(<http://dx.doi.org/10.1063/1.4793498>)

②Laurent Tranchant, Takuro Tokunaga, Beomjoon Kim, Nobuyuki Takama, Yann Chalopin and Sebastian Volz: Surface Phonon Polariton Mediated Thermal Conduction of a Micrometric Glass Waveguide, *Journal of Physics*, conference series, Vol. 395, pp. 012087, 2012, 査読有 (doi:10.1088/1742-6596/395/1/012087)

③Takuro Tokunaga, Laurent Tranchant, Nobuyuki Takama, Sebastian Volz and Beomjoon Kim: Experimental Study of Heat Transfer in Micro Glass Tubes Mediated by Surface Phonon Polaritons, *Journal of Physics*, conference series, Vol. 395, pp. 012108, 2012, 査読有

(doi:10.1088/1742-6596/395/1/012108)

④Patrick Ginet, Kevin Montagne, Sho Akiyama, Ali Rajabpour, Akiyoshi Taniguchi, Teruo Fujii, Yasuyuki Sakai, Beomjoon Kim, Dominique Fourmy and Sebastian Volz: Towards Single Cell Heat Shock Response by Accurate Control on Thermal Confinement with an On-Chip Microwire Electrode, *Lab Chip*, Vol. 11, Issue 8, pp. 1513-1520, 2011, 査読有

(DOI:10.1039/C0LC00701C)

⑤山田健太、ジネ パトリック、ボルツ セバスチャン、モンターニュ ケビン、酒井康行、フォーミー ドミニク、ラジャブプールアリ、金 範 峻: 単一細胞レベルでの熱ショックタンパク質の発現メカニズム解明にむけたマイクロヒーターデバイスの開発、*生産研究*, Vol. 63, No. 3, pp. 345-349, 2011, 査読無

(https://www.jstage.jst.go.jp/browse/seisankenkyu/63/3/_contents/-char/ja/)

⑥穂山翔、パトリックジネ、鄭一東、高間信行、金範峻: MEMS 技術を用いたナノワイヤの製作およびバイオ物質センシングへの応用、*生産研究*, Vol. 62, No. 3, pp. 249-254, 2010, 査読無

(https://www.jstage.jst.go.jp/browse/seisankenkyu/62/3/_contents/-char/ja/)

〔学会発表〕(計9件)

① Jose Ordóñez-Miranda, Laurent Tranchant, Takuro Tokunaga, Beomjoon Kim, Thomas Antoni, Yann Chalopin, Sebastian Volz: Thermal Conductivity Enhancement of Amorphous Nano-sized Thin Films and Tubes Due to Surface Phonon-polariton, *2013 MRS Spring Meeting & Exhibit*, April 1-5, California, U.S.A., 2013 (4. April, poster presentation, II9.21)

② Laurent Tranchant, Takuro Tokunaga, Beomjoon Kim, Sebastian Volz: Dispersion Relation of a Surface Phonon Polariton Propagating in a Cylindrical Micrometric Glass Waveguide, *The Third International Forum on Heat Transfer (IFHT2012)*, Poster No. 164, Nagasaki, November 13-15, 2012

③ Takuro Tokunaga, Ikjoo Byun, Nobuyuki Takama, Sebastian Volz and Beomjoon Kim: Experimental Study of Heat Transfer in Micro Glass Tubes Mediated by Surface Phonon Polaritons, *6th European Thermal Sciences Conference (Eurotherm 2012)*, 4-7, September, 2012, Poitiers, France, Book of Abstracts, pp. 182, 2012

④ Laurent Tranchant, Takuro Tokunaga, Beomjoon Kim, Nobuyuki Takama, Yann Chalopin, Sebastian Volz: Surface Phonon Polariton Mediated thermal conduction of a micrometric glass waveguide, *6th European Thermal Sciences Conference (Eurotherm 2012)*, 4-7, September, 2012, Poitiers, France, Book of Abstracts, pp. 155, 2012

(oral presentation)

⑤ Sebastian Volz, Takuro Tokunaga, Nobuyuki Takama, and Beomjoon Kim: Novel investigation of thermal nanostructures for guided surface phonon polaritons, *2012 MRS Spring Meeting & Exhibit*, April 9-13, California, U.S.A., 2012

(10. April, oral presentation/1271873, JJ1.8)

⑥ T. Tokunaga, I. Byun, P. Ginet, N. Takama, S. Volz, and B. J. Kim: Thermal conductivity of Tapered Micro Glass Tubes in Vacuum condition, *2012 International Conference on Electronics, Information and Communication (ICEIC 2012)*, Proceeding ICEIC 2012 CD, pp. 120-121, February 1-3, 2012, The High1 Resort, Jeongseon, Korea, 2012 (oral, Feb. 2.)

⑦ Ryohei Ueno, Patrick Ginet, Kenta Yamada, Kevin Montagne, Yasuyuki Sakai, Dominique Fourmy, Teruo Fujii, Sebastian

Volz and Beomjoon Kim: Fast local heating with Nano/micro wires for single cell heat shock response, *AsiaSense 2011, The 5th International Conference on Sensors*, TuD1-3, 23-26. Oct. 2011, Jeju, Korea (Oral)

⑧ Kenta Yamada, Patrick Ginet, Sebastian Volz, Kevin Montagne, Yasuyuki Sakai, Dominique Fourmy, Ali Rajabpour and Beomjoon Kim: Gold microheater for investigation of thermo-mechanism of heat shock proteins in a single cell, *The 36th. International Conference on Micro & Nano Engineering (MNE 2010)*, Program Guide abstract book, pp. 43, 0-LIFE-21, Genoa, Italy, 19-22 September 2010.

⑨ Patrick Ginet, Kevin Montagne, Sho Akiyama, Yasuyuki Sakai, Teruo Fujii, Dominique Fourmy, Sebastian Volz and Beomjoon Kim: Heat-Shock Protein synthesis in animal cells induced by gold microheaters, *The 14th. International Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (μ TAS 2010)*, pp. 977-979, Groningen, The Netherlands, 3-7 October 2010.

〔図書〕(計1件)

Sebastian Volz, (Springer; 1st Edition.) *Thermal Nanosystems and Nanomaterials (Topics in Applied Physics)*, 2010, 587 pages.

〔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://www.kimlab.iis.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

金 範ジュン (KIM BEOMJOON)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：60334356

(2) 研究分担者

高間 信行 (TAKAMA NOBUYUKI)

東京大学・生産技術研究所・技術専門員

研究者番号：00396912

(3) 連携研究者

ヴォルツ セバスチャン (VOLZ SEBASTIAN)

東京大学・生産技術研究所・外国人客員研究員

研究者番号：70533636