

## 論文の内容の要旨

論文題目      フォノニック結晶ナノ構造を用いた熱伝導制御と  
                         平面型シリコン熱電変換エネルギーハーベスタ  
**Heat conduction control by phononic crystal nanostructures  
and planar-type silicon thermoelectric energy harvesters**

氏      名      柳澤 亮人

近年、熱伝導制御技術への期待が高まっており、固体物質中の熱伝導制御による熱電変換素子の性能向上とその応用について研究が行われている。熱電変換素子は温度差から電力を発電することが可能であり、工場や自動車などで廃熱として捨てられている熱エネルギーを回収するなどの利用が期待されているが、発電効率が低いことと発電量に対して素子のコストが高いことが普及に向けて課題となっている。熱電変換材料として、ビスマスやテルルなどの合金が高い性能を示しているが、レアメタルであることからコストが高く、近年では地球上に多く存在しているシリコンや鉄、アルミニウムなどの合金を用いた熱電変換材料の研究が行われている。特にシリコンはナノテクノロジーの進歩によって、シリコンナノ構造における熱伝導の低減が多く報告され、熱電変換材料としての期待が高まっている。シリコンを用いた熱電変換素子は、半導体素子製造技術を用いて大量生産が可能であり、環境中の微小な温度差から発電することで、今後その数が大きく増加すると予測されている様々なセンサーを駆動するための自立発電素子としての応用が考えられている。

そこで、本研究ではナノ構造を用いてシリコン薄膜中の熱伝導を制御し、平面型熱電変換素子に応用することで高性能な熱電発電素子を実現することを目的とした。特徴として、ナノ構造及び、熱電変換素子は全て半導体素子の製造に用いられるリソグラフィベースの工程で作製され、ナノ構造の作製においては熱輸送を担うフォノンの特性を考慮して設計を行った。手法として、ナノ構造を作製した多結晶シリコン薄膜の熱電変換性能指数を測定することで、最適なナノ構造寸法を決定し、次にナノ構造化シリコン薄膜を用いた平面型熱電変換素子を作製・評価することで、ナノ構造による発電量の向上を実証する。最後に、素子上部にキャップ構造を作製することで素子の熱設計を改善し、 $1 \mu\text{Wcm}^{-2}$ 以上の発電量密度を実現する。

第2章では、ナノ構造による熱伝導制御を理解するために、固体中の熱輸送とナノスケールに特徴的な振舞いを概説した。特にシリコンにおける熱伝導に関する研究と、フォノン結晶ナノ構造を用いた熱伝導制御に関する研究について、代表的な先行研究をまとめた。

第3章では、マイクロ・ナノスケールの半導体素子作製に用いられるリソグラフィベースのウエハプロセスについて述べ、ナノ構造化シリコン薄膜試料の熱伝導率測定に用いられるマイクロサーモリフレクタンス法について、試料の作製方法と測定・解析手法について述べた。

第4章では、円孔配列のナノ構造を作製した多結晶シリコン薄膜について、熱電変換性能指数の測定・評価を行い、熱電変換素子に用いる最適なナノ構造及びプロセス条件を決定した。まずパワーファクターの測定から最適なイオン注入ドーズ量を決定した。次に熱アニール時間を変えた試料について熱伝導率とキャリア濃度の測定を行い、熱アニール時間が長いほど熱伝導率が増加する結果が得られ、最適なプロセス条件を決定した。そしてナノ構造について、円孔配列の格子形状と円孔半径を変えた多数の試料において熱伝導率及び電気伝導率を測定することで、熱電変換性能を最大化する最適な設計を決定した。円孔周期 300 nm、円孔半径 120 nm のハニカム格子のナノ構造を作製した試料において、熱電変換性能指数 0.02 が得られた。

第5章では、フォノン結晶ナノ構造を作製した多結晶シリコン薄膜を用いた平面型ユニレグ熱電変換素子の作製・評価を行った。平面型熱電変換素子として、n型シリコンのみを用いたユニレグ型素子を考案し、一般的な熱電変換素子と比較して少ない工程で作製できる素子設計を行った。作製した素子の電気抵抗と熱起電力の測定から発電量を評価し、ナノ構造による10倍の発電量向上を実証した。一方で課題として、素子内部に生じる温度差が小さいことがわかり、素子の熱設計を改善する必要があることがわかった。

第6章では、熱電変換素子の熱設計を改善するために、上部にキャップ構造を有する素子を設計し、シミュレーションと実験によってその有効性を実証した。素子上部にシリコンウエハと熱交換器を乗せた試料を作製し、温度差を与えた際の発電量の測定・評価から、キャップ構造によって素子内部に生じる温度差が20倍以上増加していることを観測し、配線材料と素子設計の最適化と合わせて600倍の発電量増加を達成した。素子外部の温度差15°Cから目標である $1\ \mu\text{Wcm}^{-2}$ 以上の発電量密度を達成した。また、応用研究に向けて集積数を増やした素子の作製にも取り組み、 $0.14\ \text{cm}^2$ の面積に2400ユニットを集積した素子を作製・評価し、素子外部の温度差10°Cから $0.1\ \mu\text{W}$ の発電量を達成した。

第7章では、本研究のまとめと将来の展望について述べた。本研究は、ナノ構造を作製したシリコン薄膜を用いた平面型熱電変換素子について、材料における基礎物性探索から、素子による実証、さらには応用に向けた素子開発まで首尾一貫して行った研究であり、多数の試料についての系統的な実験結果から、平面型熱電変換素子について多くの知見が得られた。