

論文の内容の要旨

Thesis summary

論文題目 Investigations on surface phonon-polariton thermal transport in
dielectric multilayers
(誘電体多層膜における表面フォノンポラリトンの熱輸送に関する研究)

氏 名 立川 冴子

本論文では、誘電体多層膜、特にSiO₂/Si/SiO₂の3層構造における表面フォノンポラリトン (Surface phonon-polariton: SPhP) の伝播について、理論と実験の双方から行った分析についてまとめている。表面フォノンポラリトンとは、誘電体界面において電磁波と光学フォノンがカップリングすることで、界面に局在する連成波である。面外方向に指数関数的に減衰し、面内方向には伝播する。共振周波数が赤外領域にあることから、面内方向に熱的エネルギーを運ぶことで知られ、特にナノスケール厚さの薄膜に関しては、数百 μm を超える伝播長を有し、フォノンによる伝導をしのぐ¹ことから、伝導、輻射とならぶ新たな熱キャリアとして近年注目が集まっている²。

第一章では、一般的に、マクロスケールにおける伝熱機構と、マイクロ～ナノスケールにおけるそれは異なることについて触れ、SPhPへの導入へ入る。第一章ではさらに、SPhPの応用技術についても紹介している。面外方向へはエネルギーが局在していることに加え、共進周波数においてモノクロマティックなスペクトラムを有することを活かし、熱

¹ D-Z A. Chen, *et al.*, Physical Review B 72.15 (2005): 155435.

² O-M. José, *et al.*, Journal of Applied Physics 113.8 (2013): 084311.

光起電力発電への応用が期待されている³。また、表面に周期構造を施しSPhPを散乱させることで、放射制御にも活用が見込まれる。第一章の最後には、本研究の目的が示されている。表面フォノンポラリトンにおいては、理論的解明が進む中、近年の微細加工技術の発展により、実験的検出も行われるようになってきた。特に面外方向の熱輸送は、マイクロヒーターとマイクロセンサー間のギャップを数nmの距離まで近づけることで、指数関数的に局在するエネルギーの検出とギャップ距離依存性を測定した報告が数々存在する⁴⁵⁶。しかし、SPhPの面内熱輸送を観測した報告は限定的⁷⁸で、ナノスケール薄膜の作製・維持という技術的障壁や、単一薄膜の実用性といった課題が存在する。そこで我々は、SiO₂/Si/SiO₂の3層構造を採用した。中間のSi層を支持層とし、SiO₂の薄膜でSi層を挟むことにより、上下のSiO₂層で誘起されたSPhPが吸収のないSi層でカップリングし、より長い伝播長を有することが見込まれる。これにより、機械的安定性と高い熱伝導特性を実現する構造が期待される。本研究では、この3層構造におけるSPhPの伝播を理論的に解明する。さらに、機械的に安定であることを活かし、SPhPは面内方向に設けられたギャップを超えて熱エネルギーを輸送し得るのかについて、実験的に検証することを目的とする。面外方向のギャップ間熱輸送とは異なり、面内方向のSPhPによるギャップ間熱輸送が議論されたことはなく、実験的検証もない。本研究は、SPhPの面内熱輸送機構について物理的知見をもたらす。

第二章では、SiO₂/Si/SiO₂の3層構造におけるSPhPの伝播について、理論的解析に関する報告を記述した。表面フォノンポラリトンの波数ベクトルはMaxwell方程式を、適切な境界条件にて解くことで得られる。本章ではまず、単一界面・単一薄膜におけるSPhPの分散関係ならびに面内・面外方向の波数ベクトルの導出から説明したのち、SiO₂/Si/SiO₂の3層構造におけるSPhPの波数ベクトルの導出を示す。Si層厚さがマイクロスケールのとき、複数のブランチが存在し、それぞれが異なる伝播長を有することが分かった。さらに、SiO₂層、Si層それぞれについてSPhPの膜厚依存性についても分析を行った。SiO₂層膜厚が薄いほど吸収が少なく、伝播長は長くなった。Siを10 μm厚さで固定した場合、SiO₂層膜厚が150 nm以上だと、3層構造の熱伝導コンダクタンスの方が、SiO₂の単一薄膜のそれより大きくなることが分かった。機械的に安定で、かつ熱伝導特

³ A. Fiorino, *et al.*, Nature nanotechnology 13.9 (2018): 806-811.

⁴ K. Kim, *et al.*, Nature 528.7582 (2015): 387-391.

⁵ B. Song, *et al.*, Nature nanotechnology 11.6 (2016): 509-514.

⁶ J. DeSutter, *et al.*, Nature nanotechnology 14.8 (2019): 751-755.

⁷ L. Tranchant, *et al.*, Nano letters 19.10 (2019): 6924-6930.

⁸ Y. Wu, *et al.*, Science advances 6.40 (2020): eabb4461.

性に優れた構造を見いだせたといえる。この結果は論文投稿を行った⁹。Si層膜厚依存性については、Si層を薄くすると異なる吸収のメカニズムが存在することが分かった。Si層が十分に厚い場合は、吸収のないSi層内を伝搬して面内方向にエネルギーを運ぶモードがあるため、伝搬長は長くなる。しかしSi層厚さが波長より小さくなると、上下のSiO₂膜間におけるカップリングの効果が大きくなるため、伝搬長が長くなることが計算により明らかになった。Si内に伝播波が存在できなくなる1 μm厚さ程度で、伝播長の最小点が存在し、2つの吸収メカニズムを隔てている。これにより熱伝導率にも最小点が存在することが明らかになり、多層膜構造におけるSPhPの熱輸送について新たな知見を得ることができた。

第三章では、SPhPの面内方向におけるギャップ間熱輸送についての実験的検証について記述した。我々はSiO₂/Si/SiO₂構造のマイクロヒーターとマイクロセンサーを作製し、10 μmのギャップを設けた。マイクロヒーターとマイクロセンサーは長い支持梁で支えられ、金属線を這わせ、電流を流すことで加熱と温度検出を電氣的に行う。まずはこの熱測定系についての説明から入る。伝導に比べコンダクタンスの低い輻射を検出するため、高感度かつ高精度な熱測定系が求められる。そこで我々は3ω法とホイートストンブリッジを組み合わせた測定系を用いた。ヒーター側には周波数ωの交流電流を入力すると、ジュール熱により2ωの周波数でヒーター側の温度が上昇する。そのため、ヒーターの電気抵抗も周波数2ωで変化し、元の入力のω成分と合わせた3ωの成分が産出される。この成分を差動増幅器とロックインアンプでフィルタリングすることによりヒーター側の温度上昇が産出できる。一方、センサー側はホイートストンブリッジを組み、直流電流を流す。ヒーター側からの熱流により、センサー温度も周波数2ωで振動する。これによるセンサーの電氣的抵抗すなわち電圧における2ω成分をブリッジ間に噛ませたロックインアンプによりフィルタリングし、センサー側の温度上昇を算出する。本章では次に、デバイスの作製方法・手順について記述されている。表面フォノンポラリトンの面内方向のギャップ間熱輸送を評価するために、我々は10 μm厚さのSiのみのマイクロヒーター・マイクロセンサー間の熱輸送を測定し、続いて同じ厚さのSiを30, 70, 200 nm厚さのSiO₂層で挟んだSiO₂/Si/SiO₂構造のデバイスについても同様の測定を行い、ギャップ間熱伝導コンダクタンスの比較を行った。Si層のみの場合、その熱伝導コンダクタンスは、プランクの法則により算出される輻射熱伝導コンダクタンスとほぼ一致した。しかしSiO₂/Si/SiO₂構造のデバイスについて、熱伝導コンダクタンスはSi層のみの場合のそれとは比べほぼ2倍の値を示し、これはSiO₂層が加わったことによる輻射熱伝導コンダクタンスの上昇では説明できない上昇であった。我々は、デバイスにおけるSPhPのギャップ間熱伝導コンダクタンスを概算し、実験で見られた熱伝導コンダクタンス上昇との、オーダーでの一致や、温度依存性の一致を確認した。

⁹ S. Tachikawa, *et al.*, *Nanomaterials* 10.7 (2020): 1383.