

審査の結果の要旨

氏名 小宅 教文

本論文は「時間領域サーモリフレクタンズ法を用いたナノ界面構造による熱伝導制御性の評価」と題し、時間領域サーモリフレクタンズ法によってナノ界面構造の熱伝導を計測し、その結果をフォノン輸送モデルによって解釈することにより、構造による熱輸送の制御性およびその機構を明らかにしたものである。

近年のナノテクノロジーの進歩によってナノ界面構造を有する材料や素子が広く用いられるようになり、伝熱現象を議論する際に実効的な熱伝導率のサイズ効果を考慮する必要性が出てきた。一般に、フォノンの平均自由行程が電子のそれに比べて長いことから、熱伝導率のサイズ効果を理解することは、半導体や絶縁体において特に重要である。応用的な観点から考えると、ナノ界面構造による熱伝導低減は、電子デバイスを始めとする半導体素子の熱マネージメントに関わるとともに、熱電変換効率の向上にも直結するなど、熱伝導の制御性を利用して材料開発を行う上でも重要である。以上を踏まえ、本論文ではフェムト秒パルスレーザを用いた時間領域サーモリフレクタンズ(TDTR)法を用いて、ナノスケールの熱伝導測定を行い、フォノン気体のボルツマン輸送に基づいた理論モデルと比較することによって、実効的な熱伝導率のサイズ効果と構造によるその制御性を明らかにした。論文は全7章よりなっている。

第1章は、「序論」であり、ナノスケールでの熱輸送の非フーリエ性（弾道性）や、界面でのフォノン散乱効果の増大によって熱伝導が低減されること、または応用的な視点から集積回路の熱マネージメントや熱電変換材料での制御性および重要性、さらにはそれらに対する計測にもとづいた解析の必要性を議論し、論文全体の流れを述べている。

第2章は、「実験装置」であり、TDTR法について説明している。TDTR法はフェムト秒レーザを用いた非定常熱測定法であり、サーモリフレクタンズとポンプ・プローブ法で試料の温度変化をピコ秒の時間分解能で測定し、ナノスケール熱輸送測定を可能にしたものがある。他の測定法と比較を行いながら手法の概要を説明し、装置の詳細な構成と動作について述べている。

第3章は、「熱緩和波形解析」であり、TDTR法によって得られた熱緩和波形と物理モデルのフィッティングによって界面熱コンダクタンスや薄膜の熱伝導率等の未知パラメーター

を求める手法を説明している。物理モデルでは、円筒座標系熱伝導方程式を基礎方程式とし、変調されたパルスレーザーによって引き起こされる多層構造試料の非定常熱応答を再現した。この物理モデルについて詳細を述べ、具体的なフィッティング手法や測定誤差について議論している。

第4章は、「フォノン平均自由行程の測定手法の確立」であり、ナノスケールの熱輸送を考える上で重要となる、フォノンの平均自由行程を測定する技術に関して説明している。本研究では、従来技術を発展させて、従来よりも短いナノメートルオーダーでの平均自由行程測定を実現するべく、ボトムアップ的手法で基板上に直径数十 nm の金属粒子を作製し、TDTR法による金属粒子の熱緩和測定を行って従来手法よりも短いフォノン平均自由行程の測定を実現した。

第5章は、「Si ナノ構造によるフォノン輸送制御解析」であり、数 nm サイズの Si 粒子とその表面を覆う極薄の Si 酸化膜によって構成されるエピタキシャル Si ナノ構造体 (SiNC) の熱輸送計測・解析を行っている。まず、TDTR法を用いて、SiNC の熱伝導率が粒径に依らず全温度域で低いことを示した。次に、Atomistic Green's Function 法によって極薄酸化膜のフォノン透過確率を求め、第一原理計算に基づいた Si のフォノン物性ととも SiNC の熱伝導率を評価した。その結果、フォノン気体モデルを用いて求めた熱伝導率がフィッティングパラメーター無しで実験値を再現し、SiNC の低熱伝導率は高密度の極薄酸化膜に起因することが明らかになった。また、最も熱伝導率が低い粒径 3 nm の SiNC では、フォノンの緩和時間が最小熱伝導率モデルと一致し、フォノンが伝播せずに独立振動子として振る舞う状態になっていることが分かった。

第6章は、「エピタキシャル Si/Ge ナノドット構造によるフォノン輸送制御解析」であり、前章の SiNC に Ge ナノドットを埋め込んだエピタキシャル Si/Ge ナノドット (Si/GeNDs) の熱輸送計測・解析を行っている。複雑な構造体のフォノン散乱頻度をレイトレーシング法で求め、フォノン気体モデルを用いて Si/GeNDs の熱伝導率を評価した結果、フィッティングパラメーター無しで実験値をよく再現した。また、Ge ナノドットによる散乱と極薄酸化膜による散乱は独立事象ではなく、それらの相互作用によって散乱頻度が増大していることが明らかになった。さらに、フォノンが極薄酸化膜で散乱されて構造体中を行き来することで Ge ナノドットによる散乱が促進されることを示し、界面散乱と粒子散乱の組み合わせによって効率的に熱伝導率低減が可能であるという設計指針を導出した。

第7章は、結論であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上を要するに、本論文では、時間領域サーモリフレクタンズ法を用いてナノ界面構造

による熱伝導制御性の評価を行った。はじめに、透明基板上に数十ナノメートルの金ナノアイランドを作製し、加熱・測温領域を狭めることでサイズ効果を誘起し、従来手法よりも熱伝導率が低い（フォノン平均自由行程が短い）材料に対してフォノン平均自由行程の測定をボトムアップ法によって実現した。次に、Si ナノ結晶で充填されているエピタキシャル構造の熱伝導率の温度依存性を測定し、理論モデルと合わせて低熱伝導率（アモルファス Si よりも有意に小さい）のメカニズムを解明した。低熱伝導率化にはナノ結晶界面の極薄酸化膜でのフォノン反射が大きく寄与し、フォノンの伝播がほぼ完全に抑制されていることがわかった。さらに、Ge ナノ結晶を加えたエピタキシャル Si/Ge 構造の熱伝導率も同様に測定してその低熱伝導率のメカニズムを異なるナノ構造によるフォノンの多重散乱に基づいて説明した。以上のように、本論文で構築した測定手法や、フォノンの輸送モデルを用いて、ナノスケールの熱伝導の理解や低熱伝導材料の開発に有用な知見を得ることに成功した。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。