

研 究 報 告 書

「熱フォノニクスの学理創出と高効率熱電変換への応用」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2015 年 12 月～2019 年 3 月

研 究 者: 野村 政宏

1. 研究のねらい

熱フォノニクスの学理創出と半導体ナノ加工技術によって低環境負荷な Si を高効率熱電変換材料に昇華させることを目的とし、実用的な熱電変換技術の基礎となる学理を創出しつつ基盤技術を構築した。熱フォノニクスは、伝熱工学分野の一領域を形成する重要な分野となりつつあるが学理形成過程にあるため、系統的で普遍性のある知見を産み出して学理を構築し、熱電変換技術への応用を目指した。

本研究は、光子とフォノンのアナロジーから、高度に発展した光波制御技術を伝熱制御技術に応用し飛躍的な発展をもたらすことをコンセプトとし、下記のポイントを押さえて進めた。

1. フォノンの波動性を用いた短距離秩序制御による熱伝導制御を世界で初めて実証する、
2. 系統的で普遍性のある知見を獲得し、熱フォノニクスの学理を創出する、
3. 低環境負荷な Si にナノ加工を施し、熱電変換の増強を実証し、デバイスを作製する。

フォノンの波動性に基づいた熱伝導制御の概念は古くから存在するが、極めて挑戦的なテーマである。波動光学が幾何光学よりも遥かに豊かな光波制御技術をもたらしたように、フォノンの波動性を利用する熱フォノニクスは伝熱工学に新展開をもたらすと期待できるため、理論・実験の両面で系統的データの蓄積および新奇物理の予測と実証を目指した。また、フォノンの弾道性を積極利用することで、半導体中の高度な熱伝導制御技術を産み出すことを狙った。

ナノ構造化による熱伝導制御のポイントは、熱フォノンの波長とマルチスケール特性である。本研究では熱伝導を担うフォノンの周波数帯を考慮し、その周波数領域全域でのフォノン輸送制御を可能にするオールスケールアーキテクチャによる伝熱制御を行った。理論計算により熱伝導を決定するフォノンの平均自由行程を特定し、複数に分けた領域で多結晶 Si の粒界と界面、フォノンニック結晶 (PnC) ナノ/マイクロ構造などの異なるスケールのフォノン散乱機構を用いて輸送制御に有効な手法を採用することで確実な性能向上の実現を狙った。

上記の基礎的な知見を基に高効率な薄膜 Si エネルギーハーベスターの作製を進めた。ウェハタイプのためデバイス構造の最適化も行い、性能評価と高性能化を進めている。現システムとの整合性、コスト、環境負荷などの面で絶対的に優位な Si をナノ加工技術で高効率熱電変換材料に昇華させ、実用化へ展開させる産業的・社会的意義は極めて大きく、本研究で基礎物理から応用への道筋をつけて実用的な環境発電技術の新たな選択肢を提供することを目指した。

2. 研究成果

(1) 概要

熱フォノンが有する波動性や弾道的輸送特性に基づくナノスケール特有の熱伝導の物理探索と、ナノ構造化による高度な熱流制御技術開発を行った。また、その過程で得られた知見と技術に立脚し、低環境負荷 Si 熱電変換材料開発を進め、Si 薄膜にフォノンナノ構造を形成することで、熱電変換効率の大幅な向上を実現しデバイス作製を進めた。紙面の都合上、主な成果のみ箇条書きし、(2)で各トピックの詳細を記述する。

- ・ フォノン結晶の短距離秩序制御による熱伝導制御の実現 [Science Adv. 2017].
- ・ 指向性熱流および集熱の実現 [Nat. Commun. 2017]
- ・ phonon Levy flight によるナノワイヤー中の特異な熱伝導の物理 [ACS Nano 2018]
- ・ ナノ構造化による Si 薄膜熱電変換材料の高性能化の実証

(2) 詳細

A: フォノンエンジニアリングの学理探求

物理探索では、主に単結晶 Si に二次元フォノン結晶を形成し、熱フォノンの波動性および弾道的輸送特性を顕在化させ、特徴的な熱伝導の物理探索と制御技術開発を行った。一連の成果は熱フォノン・フォノンエンジニアリング分野に多くの新たな知見と技術をもたらしたため、研究目的は達成されたとと言える。

A1: 波動性を利用した熱伝導制御

熱フォノンが有する波動性に基づいた熱伝導制御は、コンセプトは長年存在するが実証が難しい挑戦的課題である。Si 薄膜に二次元フォノン結晶および短距離秩序を系統的に乱した構造を作製し、熱拡散率を比較した。波動性が顕在化する低温で、秩序乱れの大きさによって熱伝導が制御できることを実証した。昇温によってコヒーレンスが失われ、効果が徐々に消失する様子も観測した。熱フォノン研究におけるマイルストーン的成果と位置付けられる。

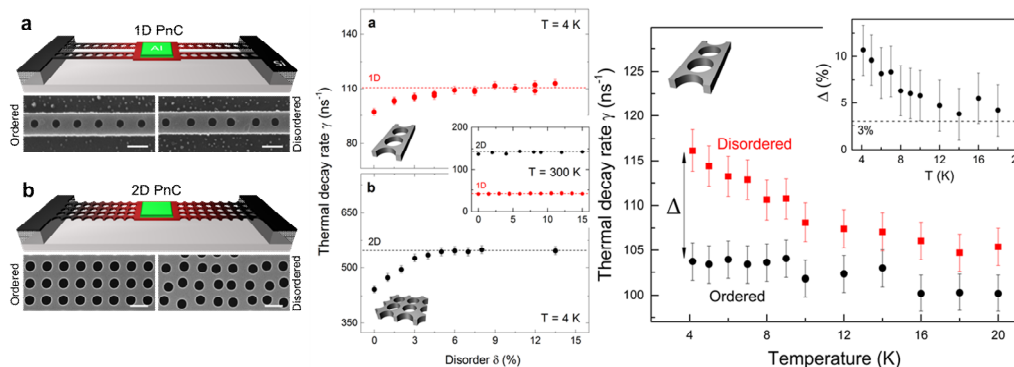


図 1. (左)フォノン結晶の模式図と SEM 像。(中)熱拡散時間の円孔位置ずれ量依存性。波動性が顕著となる 4 K では、完全結晶に近いほど熱伝導が抑制される。(右)完全結晶とアモルファス構造の差異の温度依存性。

A2: 弾道性を利用した熱伝導制御

A2-1: 指向性熱流の実現

モンテカルロ計算から、フォノンの弾道的輸送特性により整列した円孔に沿って熱流に指向

性が付与できることがわかった(図3左)。そこで、図3(中)のようにシリコン薄膜 PnC の出口にナノワイヤー構造が結合した構造と半周期シフトさせて結合しない構造を作製して熱散逸時間を測定した。その結果4 Kでは15%, 室温においても6%の熱散逸時間の差を観測した。これは、整列した円孔が熱流に指向性を与えたことを示しており、新しい熱制御技術を提案・実証した。

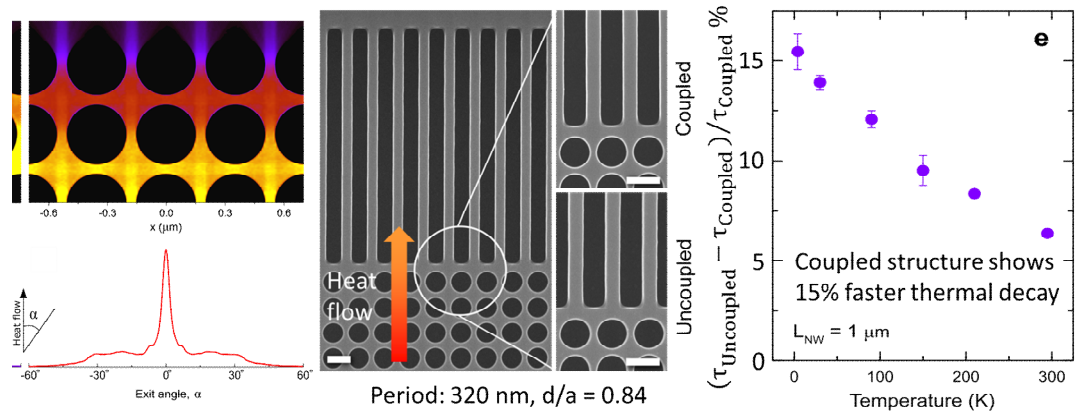


図 2. (左)モンテカルロ計算によるフォノン結晶中のフォノン輸送計算。スリットの方に沿ったフォノンパスが顕著に存在する。(中)フォノン結晶とナノワイヤー構造の結合構造の SEM 像。(右)熱散逸時間の差の温度依存性。

A2-2: 集熱の実現

ナノ構造を放射状に配置してレンズのような働きを持たせ、固体において熱を一点に集中させる、集熱を実現した。図 3(左)のように焦点となる一点から放射状に円孔を配置することで、レンズのような構造を作製した。集熱の実証実験には、焦点位置とそこから右にずらした位置に熱の逃げ道となるスリットを設けた構造を複数用意し、熱散逸時間を計測した。スリットが焦点位置にあるときに最も熱散逸が早く、スリットが焦点位置からずれるにしたがい、熱散逸が遅くなることが観測され、世界で初めて固体中の集熱に成功した。

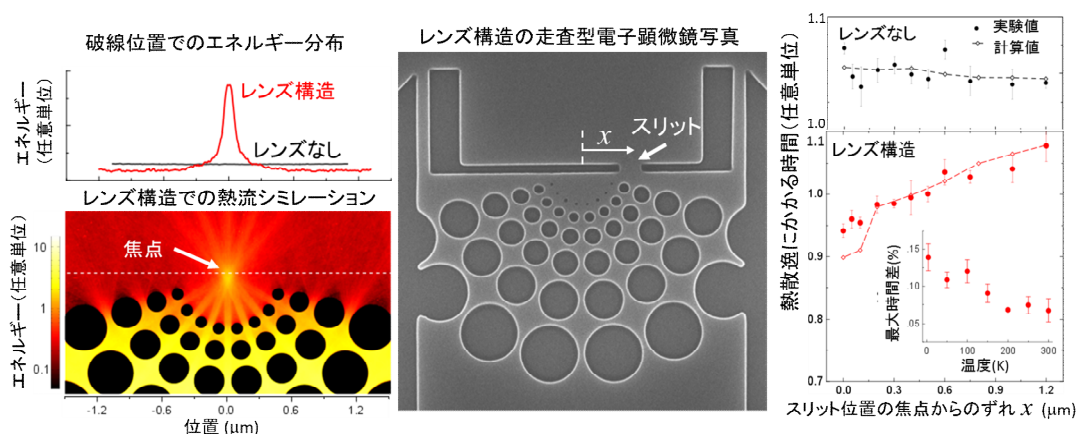


図 3. 固体集熱の実証実験。(左)集熱を示唆するシミュレーション結果。(中)熱レンズ構造と熱拡散時間を決定するスリットの結合構造。(右)熱の逃げ道になるスリットを焦点から系統的にずらして配置した構造における熱散逸時間(4 K)。

A2-3: phonon Levy flight によるナノワイヤー中の特異な熱伝導の物理

単結晶 Si ナノワイヤーおよび図 4 に示すような corrugated ナノワイヤーを作製し、熱伝導特性を測定した。corrugated ナノワイヤーがより強い指向性を与えることが実験的に証明され、シミュレーションも実験結果と整合した。弾道的輸送特性によりナノワイヤー中で Levy flight のような熱フォノン輸送が生じていることを示した。

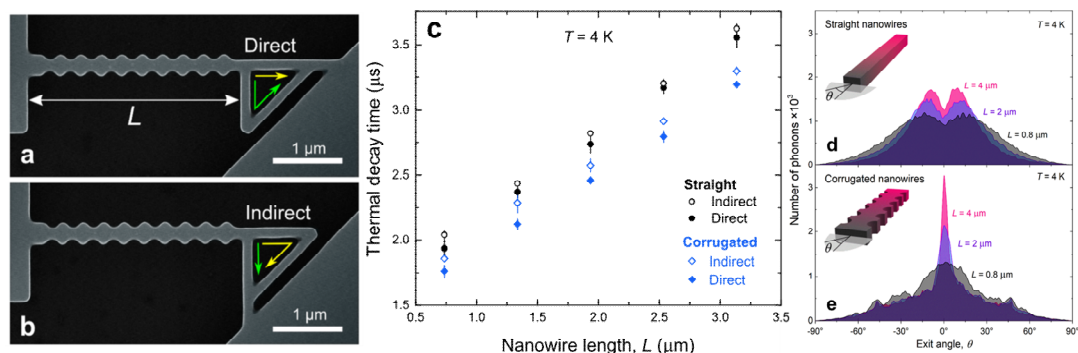


図 4. (左)corrugated Si ナノワイヤーの SEM 像。(中)ひだなしのナノワイヤーと corrugated ナノワイヤーについての direct-indirect 構造間の熱緩和時間の差。(右)両構造からのフォノン出射角度分布。

B: ナノパターニングによる Si 薄膜の熱電変換能の向上

多結晶 Si にフォノン結晶を形成することで低熱伝導率化し、かつ電気伝導率の低下を抑えた薄膜 Si 熱電変換材料の開発を行った。図 5 に示すように n 型のユニレグ構造を作製し、ハニカム格子状のパターンを形成した。熱電材料にかかる温度差が 4 倍程度となり、発電量が 10 倍に増大することが実証され、本手法の有効性が示されたことで目的は達成された。ZT 値は最適化によって目標であった 0.1 程度を達成している。一方で、デバイス構造の工夫で熱電材料にかかる温度差は 1 桁以上の増加を見込めるため、CREST において 2~3 桁の発電量の増加を達成できるよう産学連携体制でデバイス構造作製技術の開発を進めていく。

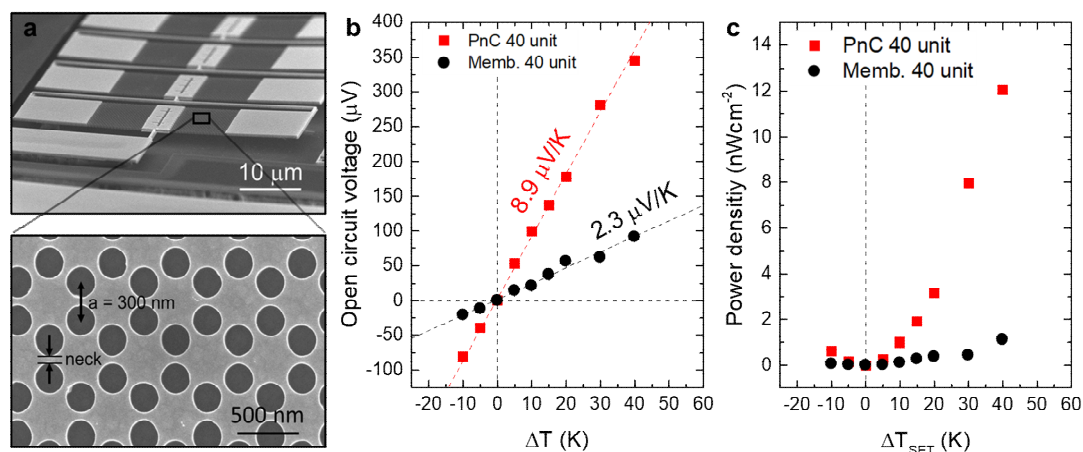


図 5. (a) ナノ構造を有する多結晶 Si 熱電変換デバイスの SEM 像。(b, c) 試作デバイスの開放電圧および発電パワー密度。フォノン結晶の形成により、1 桁の発電パワー密度の増加が確認され、有効性が実証された。

3. 今後の展開

Si 薄膜にナノ構造を形成することで実現できる熱流および熱伝導率制御技術は、半導体中での高度な熱制御技術および熱電変換材料の高性能化に応用が可能である。例えば、前者は拡散的熱輸送では実現できない熱ダイオードなどの熱機能素子、後者は低環境負荷なシリコンを用いた熱電発電により低消費電力用途のセンサーノード電源としての応用が可能であり、これらの実現を目指した研究を行っていく。後者では、産学連携体制によりインフラモニタリングシステムの構築に向けた取り組みを開始している。

4. 自己評価

独自の測定系を用いて熱フォノンクス・フォノンエンジニアリングの物理探索を系統的に広行い、独創的な研究によって多くの新しい知見を分野にもたらすとともに高度な熱制御技術を産み出したため、科学技術発展への貢献が認められる。また、ナノ構造化による材料の熱電変換効率の向上を実証したうえで、当初予定にはなかった産学連携体制の構築を行ってデバイス化を進めている。

以上の理由から、本研究は提案時の目標を達成するに留まらず、基礎・応用の両面で計画を大きく上回って展開したと評価できる。フォノンエンジニアリングに立脚したシリコン熱電変換材料およびデバイスは、エネルギー自立型低消費電力デバイス用電源としてスマート化社会を支えるため、社会への大きな波及効果が期待できる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. R. Anufriev, S. Gluchko, S. Volz, and M. Nomura, "Quasi-ballistic heat conduction due to levy phonon flights in silicon nanowires," ACS Nano, published on-line. DOI: 10.1021/acsnano.8b07597
2. J. Maire, R. Anufriev, T. Hori, J. Shiomi, S. Volz, and M. Nomura, "Thermal conductivity reduction in silicon fishbone nanowires," Sci. Rep. 8, 4452 (2018).
3. R. Anufriev, A. Ramiere, J. Maire, and M. Nomura, "Heat guiding and focusing using ballistic phonon transport in phononic nanostructures," Nat. Commun. 8, 15505 (2017).
4. J. Maire, R. Anufriev, R. Yanagisawa, S. Volz, and M. Nomura, "Heat conduction tuning using the wave nature of phonons," Sci. Adv. 3, e1700027 (2017).
5. R. Anufriev, R. Yanagisawa, and M. Nomura, "Aluminum nanopillars reduce thermal conductivity of silicon nanobeams," Nanoscale 9, 15083 (2017).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 2 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

【主要な学会発表】

1. M. Nomura (Plenary), "Advanced heat transfer control in Si membrane by phononic nanostructures," The 5th Micro & Nanoscale Heat Transfer and Energy Workshop, 8-2, Taipei,

Taiwan (2018).

2. M. Nomura (Invited), "Heat conduction control in Si membrane by phononic nanostructures," IEEE Nano 2018, Tu-5-7-1, Cork, Ireland (2018).
3. M. Nomura (Keynote), "Thin Si thermoelectric material by phonon engineering," IUMRS-ICA2017, D7-01, Taiwan (2017).
4. M. Nomura (Keynote), "Heat transfer control by Si phononic nanostructures," PHONONICS2017, Tu-3, Changsha, China, June (2017).
5. M. Nomura (Invited), "Thermal conduction control using phononic crystal nanostructures," 33rd International Conference on the Physics of Semiconductors, Mo-F3.1, Beijing, China, June (2016).

【受賞】

1. German Innovation Award, Gottfried Wagener Prize 2018
Masahiro Nomura, Thermal conduction control by phonon engineering and thermoelectric energy harvesting application, from Deutsche Industrie- und Handelskammer in Japan. (2018).
2. The Young Scientist Award, The 44th International Symposium on Compound Semiconductor
Masahiro Nomura, "For contributions to the development of thermal conduction control technology in semiconductor thin films by phonon engineering" (2017).
3. 平成28年度 丸文研究奨励賞、一般財団法人丸文財団
野村 政宏, "周期的ナノ構造を用いた熱フォノニクスの開拓" (2016).
4. PCOS2016 Best Paper Award
Masahiro Nomura, "Phonon engineering by phononic crystal nanostructures," The 28th Symposium on Phase Change Oriented Science (2016).
5. 日本機械学会熱工学部門一般表彰講演論文表彰
野村 政宏、中川 純貴、Jeremie Maire、Roman Anufriev、" Crystal Structure Dependent Thermal Conductivity in 2D Phononic Crystals," (2016).

【著作物】

1. 野村政宏, "フォノンエンジニアリングによるナノ加工シリコン熱電変換材料開発," NTS, 「フォノンエンジニアリング」分担執筆, 第1章第2節, p. 29-40, 2017年9月発刊.
2. 野村政宏, "フォノンエンジニアリングによるシリコン薄膜熱電材料の高性能化," NTS, 「サーマルデバイス汎用化技術集成」分担執筆, 第8編15. 発刊予定
3. 野村政宏, "フォノニック結晶ナノ構造による熱伝導制御," 「高熱伝導樹脂の熱伝導率の向上技術」, 第7章第7節. 2019年3月発刊予定

【プレスリリース】

1. 2017.8.08 熱の波動性用い熱伝導制御に成功(鉄鋼新聞)
2. 2017.8.07 熱の波動性で熱伝導制御(日刊工業新聞)
3. 2017.5.29 固体中の熱流制御(日経産業新聞)
4. 2017.5.19 固体内の一点に集熱(日刊工業新聞)

5. 2016.7.14 わずかな振動・熱から電気(読売新聞)