

22 Joint Session M "Phonon Engineering" | Poster presentation : 22 Joint Session M "Phonon Engineering"
(Poster)

[18p-P05-1~1] 22 Joint Session M "Phonon Engineering" (Poster)

[18p-P05-1]

Thermal Diffusivity Measurement of individual fibres using SEM and IR-thermography

○Takumi Mochizuki¹, Hiromu Hamazaki¹, Hayate Suzuki¹, Hiroya Ikeda¹ (1.Shizuoka Uni)

SEM/熱画像カメラを用いた単一繊維材料の熱拡散率計測

Thermal Diffusivity Measurement of individual fibres using SEM and IR-thermography

○ (M2) 望月拓海, 濱崎拓, (M1) 鈴木颯, 池田浩也

Shizuoka Univ., Takumi Mochizuki, Hiromu Hamasaki, Hayate Suzuki, Hiroya Ikeda

E-mail: mochizuki.takumi.19@shizuoka.ac.jp

我々は、走査電子顕微鏡（SEM）と熱画像カメラを組み合わせることにより、マイクロメートルスケールの材料に適用可能な熱伝導特性評価技術の構築を行ってきた[1]。まず、SEM の電子銃を用いて細線を加熱し、その温度分布の時間変化を熱画像カメラで計測した。次に加熱部の温度変化を一次元の熱拡散方程式の数値解と比較することで、細線の熱拡散率を評価した。試料長さを変化させながら熱拡散率を計測することで熱輻射による影響を取り除き、熱伝導度が低いポリマー材料において熱拡散率計測を行った結果を報告する。

図 1 は、本研究で使用した直径 10 μm 程度のベンコット(旭化成)繊維について長さを変えながら熱拡散率を評価したときの結果を示している。繊維長が長くなるにつれて、見かけ上の熱拡散率が大きくなっていることがわかる。これは、試料から発生する熱輻射によって失われる熱量が試料形状に依存しているためであり、ベンコットのような熱拡散率の小さい材料では、得られた見かけ上の熱拡散率から熱輻射の影響を取り除く必要があることを示している。見かけ上の熱拡散率の繊維形状依存性は以下の式で表される

$$\alpha_{app} = \alpha_{int} + \frac{L^2}{D}\beta$$

図 1 よりベンコット単一繊維の真の熱拡散率 α_{int} は $0.61 \times 10^{-6} [\text{m}^2/\text{s}]$ と求められた。他のポリマーにおける計測結果についても報告する。

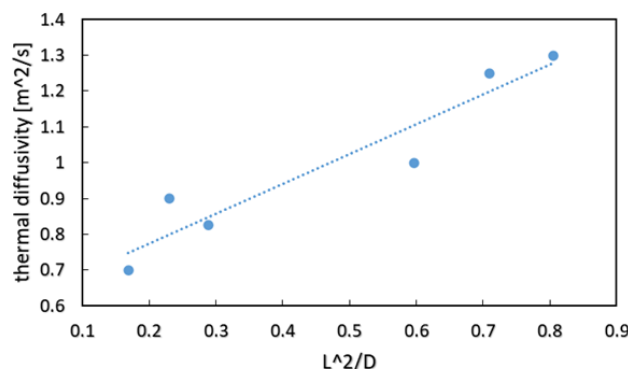


Figure1. Thermal diffusivity measurement of the thin wire using SEM and IR Thermography.

(a) SEM image, (b) IR Thermography image, and (c)

[1] 濱崎拓 他, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会 (2023) 21a-B203-5

22 Joint Session M "Phonon Engineering" | Oral presentation : 22.1 Joint Session M "Phonon Engineering"

[19a-D62-1~9] 22.1 Joint Session M "Phonon Engineering"

[19a-D62-1]

Thermal proximity sensing for the scanning probe-based thermal diffusivity measurement

○(M2)Ryota Morioka¹, Meguya Ryu², Junko Morikawa¹ (1.Tokyo Tech, 2.AIST)

[19a-D62-2]

Development of time-resolved heat transport measurement using pulsed light excited Raman spectroscopy

○Yuki Sekimoto¹, Takashi Yagi¹ (1.AIST)

[19a-D62-3]

The thermal diffusivity measurement of ferromagnetic nematic liquid crystals

○Meguya Ryu¹, Ryoga Yamazaki², Shuji Kamegaki², Hiroya Nishikawa³, Fumito Araoka³, Junko Morikawa² (1.AIST, 2.Tokyo Tech., 3.Riken CEMS)

[19a-D62-4]

Attenuation of acoustic phonon in very low thermal conductivity materials

○Keisuke Hirata¹, Masaharu Matsunami¹, Tsunehiro Takeuchi¹ (1.Toyota Tech. Inst.)

[19a-D62-5]

Temperature Dependence of Broad Peaks Derived from Ge-rich SiGe Thin Films by Oil-Immersion Raman Spectroscopy

○Yuiha Maeda¹, Ryo Yokogawa^{1,2}, Atsushi Ogura^{1,2} (1.Meiji Univ., 2.MREL)

[19a-D62-6]

Study on Longitudinal Optical Phonon Resonance Radiation from Heating of Metal-Semiconductor Microcircular Structures

○Masahiko Kishi¹, Hnin Lai Lai Aye¹, Daiki Yoshikawa¹, Yoshihiro Ishitani¹ (1.Chiba Univ.)

[19a-D62-7]

Exploration of mid-infrared thermal radiation mechanisms at longitudinal-optical phonon energy via u-GaAs/Au mesa-type surface stripe structures

○(D)Hnin LaiLai Aye¹, Masahiko Kishi¹, Daiki Yoshikawa¹, Yoshihiro Ishitani¹ (1.Chiba Univ.)

[19a-D62-8]

Development of the High-Throughput time-domain thermoreflectance technique

○Hiroto Arima¹, Yuichiro Yamashita¹, Takashi Yagi¹ (1.AIST)

[19a-D62-9]

Thermospectroscopic imaging and thermophysical property measurement of PCM in the textile-replicated MEMS structure

○Khayala Agharahimli¹, Meguya Ryu², Shuji Kamegaki³, Junko Morikawa³, Roberto Li Voti¹ (1.La Sapienza Univ, 2.AIST, 3.Tokyo Tech)

AFM 型局所熱拡散率測定による化学増幅型レジストの熱拡散率分布

Thermal proximity sensing for the scanning probe-based thermal diffusivity measurement

東工大物質¹, 産総研², ○(M2)森岡 亮太¹, 劉 芽久哉², 森川 淳子¹

Tokyo Tech¹, AIST², °Ryota Morioka¹, Meguya Ryu², Junko Morikawa¹

E-mail: morikawa.j.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】温度波熱分析法は、周期加熱に対する物質の周期的な温度応答の位相遅れと振幅減衰から熱物性値を計測する手法である。^[1]カンチレバー型温度プローブをサンプルに物理的に接触させてこの周期的な温度応答を計測する場合、位相遅れと振幅減衰にはセンサーとサンプルの熱的接触状態の情報が含まれ、局所領域熱物性計測における計測精度低下の大きな要因となる。一方、一次元熱流の仮定に基づけば、位相遅れと振幅減衰の周波数依存性は、プローブとサンプル表面の間の接触熱抵抗に依存して変化し、この周波数依存性からカンチレバー型のプローブのサンプル表面への近接状態を見積もることができる。本研究では、カンチレバー型温度センサーと周期加熱を用いて、熱的な近接センシングを行ない、温度波熱分析法の原理に基づいた頑健な局所熱物性計測手法を開発した。

【実験】金マイクロヒーター上に、測定試料として化学増幅型レジスト(mr-DWL, micro resist technology)の構造体を作製した。AFM サーマルプローブを Fig.1 に示す赤点に接触させ、ヒーターからの周期加熱との位相差を測定し、その周波数依存性から各点における熱拡散率を計測した。サーマルプローブとサンプルの接触には AFM のコンタクトモードを用いて接触力を一定とした。

【結果】Fig. 2 に、サンプル中央からの距離に対する見かけの熱拡散率を示す。サンプルの中央からヒーターの端まで、熱拡散率は $1.1 \sim 1.2 (10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1})$ と、ほぼ一定値であるが、ヒーター外では一次元熱流の仮定が難しくなり、見かけの熱拡散率は $0.637 (10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1})$ まで下がる。本実験結果から、位相を用いた熱拡散率測定では、加熱源の真上においては面内への熱の逃げの影響を受けずに測定ができることが分かった。本測定手法により、3 次元形状サンプルの面内の熱拡散率分布を、接触熱抵抗や熱流の影響を受けずに精度よく測定できることが期待される。

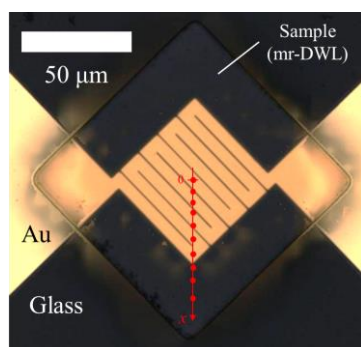


Fig.1 Micrograph of the mr-DWL structure fabricated on the Au heater. Heater area is $53 \mu\text{m} \times 53 \mu\text{m}$ and structure size is $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 21.5 \mu\text{m}$.

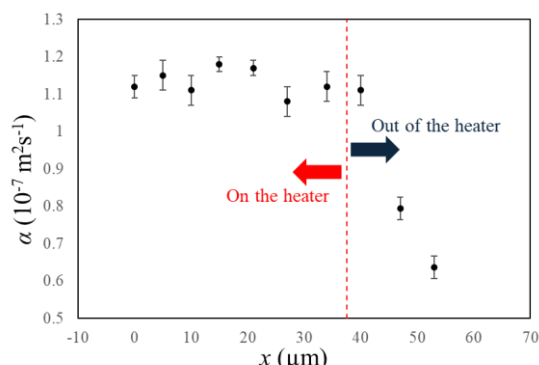


Fig.2 Thermal diffusivity measured along the red line in Figure 1 by temperature wave analysis method using an atomic force microscopy.

[1] M. Ryu, J.-C. Batsale, J. Morikawa, Int. J. Heat and Mass Transfer 162, 120337 (2020).

パルス光励起ラマン分光法を用いた時間分解熱輸送測定の開発

Development of time-resolved heat transport measurement

using pulsed light excited Raman spectroscopy

産総研¹, °関本 祐紀¹, 八木 貴志¹

AIST¹, °Yuki Sekimoto¹, Takashi Yagi¹

E-mail: y-sekimoto@aist.go.jp

近年、フォノンエンジニアリングの分野において結晶粒内部や結晶粒界面で生じる熱輸送の制御が、電子機器の熱問題を解決する手段として応用できることが期待されており、ナノ～マイクロメートルスケールで起こる熱輸送を測定することができる手法が注目されている。そこで本研究では、パルス光ラマン分光法を用いた熱輸送測定を開発する。

本研究で行うラマン分光法を用いた熱輸送測定は、レーザーを材料に照射した際のラマンシフトの温度依存性から材料の熱輸送を測定する手法であり、サブミクロンの空間分解能を実現するため、ナノ～マイクロメートルスケールの材料を測定するために研究されてきた[1, 2]。本研究では加熱用とラマン励起用に異なる種類のレーザーを用い、タイミングをずらして照射することで時間領域の熱輸送測定を行うことを目指す。本研究の模式図を図1に示す。加熱用レーザーには波長 1064 nm、波長線幅 0.8 nm のパルスレーザーを使用し、ラマン励起用レーザーには波長 532 nm、波長線幅 0.02 nm のレーザーを使用する。温度変化によるラマンシフトを精密に測定するため、分光器として波長分解能約 0.02 nm の高い分解能を有するエシエル分光器(分光計器社製、ELP-300)を使用する。

発表では、開発した構成の妥当性を検討するため Si を測定した結果について報告する。

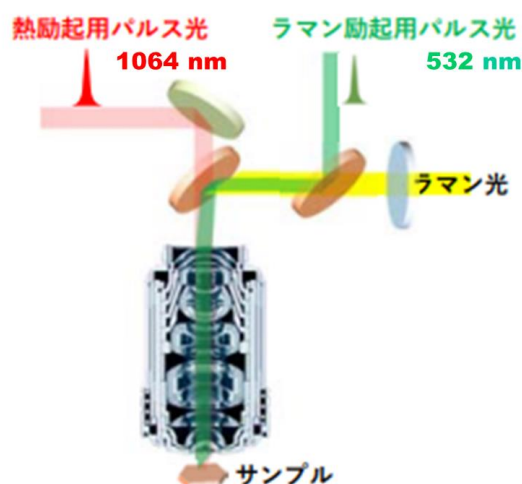


図 1. パルス光ラマン分光の模式図

[1] Q-Y. Li, *et al.*, *Carbon*. **141**, 92-98 (2019)

[2] Q-Y. Li, *et al.*, *Int J Heat Mass Tran.* **134**, 539-546 (2019)

強誘電性ネマチック液晶の相転移における熱拡散率

The thermal diffusivity measurement of ferromagnetic nematic liquid crystals

産総研¹, 東工大², 理研 CEMS³

○劉 芽久哉¹, 山崎 亮雅², 亀垣 柊二², 西川 浩矢³, 荒岡 史人³, 森川 淳子²

AIST¹, Tokyo Tech.², RIKEN CEMS³,

○Meguya Ryu¹, Ryoga Yamazaki², Shuji Kamegaki², Hiroya Nishikawa³, Fumito Araoka³,

Junko Morikawa²,

E-mail: ryu.meguya@aist.go.jp, morikawa.j.aa@m.titech.ac.jp

強誘電性ネマチックはごく近年報告された新しい液晶で、ネマチックの一種でありながら強誘電性を示し、インピーダンス測定により巨大な比誘電率が観測される。^{[1],[2]}この新しい物質群の物性研究も盛んに進められており、本研究では強誘電性ネマチックにおける熱伝導性、および通常のネマチックからの相転移における熱拡散率の変化を調査する。温度波熱分析法(TWA)は周期加熱に対する試料の周期温度応答から熱物性値を計測する手法で、相転移など動的過程の計測に適用されてきた。本研究では、強磁場下での相転移における熱拡散率変化を TWA により観測する。

ガラス基板上に薄膜測温抵抗体と薄膜ヒーター作成し、この二つのガラス基板間で周期加熱、周期的な温度応答を計測し、この2つの基板の間に液晶試料 DIO-C3 (2,3',4',5'-tetrafluoro-[1,1'-biphenyl]-4-yl 2,6-difluoro-4-(5-propyl-1,3-dioxan-2-yl)benzoate) を導入した試料セルの基板表面の法線方向の熱拡散率を計測した。実験においてはこの試料セルをホットステージに搭載することで温度走査下での測定を実現した。また、熱拡散率の異方性を求めるためホットステージ全体を強磁場装置に入れ、磁場の方向を熱拡散率測定方向に対し回転させ、垂直・平行各方向に固定後、温度走査下で温度波の位相遅れを測定することにより、DIO の熱拡散率異方性およびその相転移における変化を観測した。強磁場により、強誘電ネマチックでもフレデリクス転移によって一軸配向が得られた。熱拡散率は低温側で現れる強誘電性ネマチックにおいて特徴的な異方性を示し、強誘電性と熱拡散率の間のカップリングを示唆する結果となった(Fig. 1)。また、磁場を印可しない状態での測定では、内部のマクロな配向状態が熱伝導性に大きく寄与することが分かった。

[1] H. Nishikawa, K. Shiroshita, H. Higuchi, Y. Okumura, Y. Haseba, S. Yamamoto, K. Sago, H. Kikuchi, "A fluid liquid-crystal material with highly polar order" *Adv. Mater.*, **29**, 1702354 (2017). [2] H. Nishikawa, K. Sano, F. Araoka, "Anisotropic fluid with phototunable dielectric permittivity", *Nat. Comm.*, **13**, 1142 (2022)

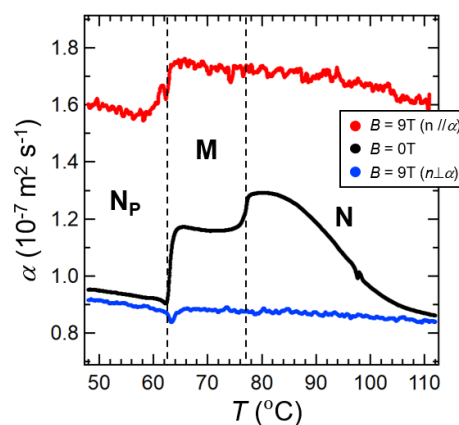


Figure 1 The temperature dependence of the thermal diffusivity measured by Temperature wave analysis (TWA) method along two different directions of DIO-C3 molecule ($n // \alpha$ & $n \perp \alpha$) shown with red and blue lines, respectively. The dark plots correspond to the apparent thermal diffusivity of spontaneously aligned DIO-C3 between two glass substrates.

低熱伝導度材料における音響フォノン減衰の解析

Attenuation of acoustic phonon in very low thermal conductivity materials

豊田工大 °平田圭佑, 松波雅治, 竹内恒博

Toyota Tech Inst., °Keisuke. Hirata, M. Matsunami, and T. Takeuchi

E-mail: k-hirata@toyota-ti.ac.jp

緒言

極めて低い格子熱伝導度を有する半導体材料は高性能熱マネジメント素子（熱電素子，熱ダイオード，熱流スイッチ等）の有望な構成材料となりえる^[1]。Ag₂X (X=S, Se, Te), Cu₂X (X=S, Se, Te), AgIn(Se, Te)₂, および, AgSb(Se, Te)₂ は極めて低い格子熱伝導度 ($\kappa_{\text{lat}} \sim 0.5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) を有する半体材料として報告されている。また, Ag_{5- δ} Te₃ ($\delta = 0 - 0.5$) は高密度であっても室温近傍で無機固体材料として最低レベルの格子熱伝導度 ($\kappa_{\text{lat}} \sim 0.2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) を示し, バンドギャップが 0.6 eV 程度の半導体材料と報告されている^[2]。これらの材料における非調和格子振動や音響フォノンの減衰を解析することで, 顕著なフォノン散乱の増大機構やフォノン群速度の低下機構を明らかにできれば, 新たな極低熱伝導度材料の設計指針の構築につながるはずである。

本研究では, 上記材料の極めて低い格子熱伝導度を生み出す顕著な非調和格子振動を実験から解析することを目的とし, 試料作製法の確立, 放射光 X 線回折実験, 超音波測定, および, 精密な物性測定を行った。

実験方法

Ag_{5- δ} Te₃ 試料は溶融法, (Ag, Cu)₂(S, Se, Te) 試料は自己発熱反応法によって合成した。相同定および結晶構造解析には, 放射光粉末 X 線回折測定を利用した。X 線回折データに対し, 最大エントロピー法を用いた非調和格子振動を反映した電子密度分布の解析も行った。ホットプレス法によって高密度なバルク試料に成型し, 熱伝導度は Laser flash 法, 電気伝導度は四端子法, ゼーベック係数は定常法により測定した。超音波パルス・エコー法 (周波数: 50 MHz) を用いた音速測定および

音響フォノンの減衰の評価も行った。

結果

超音波パルス・エコー実験の結果から緩和モデルを用いてエコー信号の減衰を計算した結果を Fig. 1 に示す。Ag_{5- δ} Te₃ の格子熱伝導度は Ag₂S の半分程度であるにも関わらず, Ag_{5- δ} Te₃ の音響フォノン波束の減衰は Ag₂S より小さいことが分かった。両者の結晶構造を比較すると, Ag_{5- δ} Te₃ の方が多くのスプリットサイトを含む複雑な構造を有しているため^[5], より顕著に音響フォノンを減衰する生み出す機構が Ag₂S において存在するはずである。その他の実験結果および考察の詳細は, 当日の講演にて報告する。

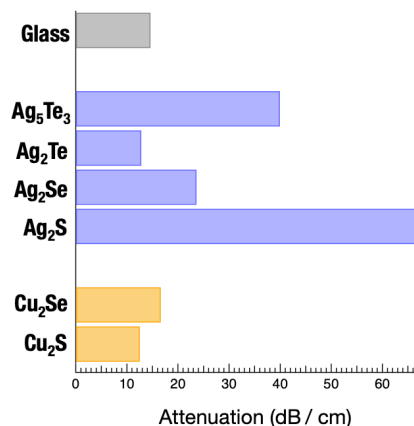


Fig. 1. Ultrasound attenuation (longitudinal wave) of several silver and copper chalcogenides measured by pulse-echo method.

参考文献

- [1] K. Hirata *et al.*, *AIP Adv.* **13**, 035122 (2023).
- [2] X. Zhang *et al.*, *ACS Energy Lett.* **2**, 2470 (2017).
- [3] D. Jung *et al.*, *Mater. Trans.*, **53**, 1216 (2012).
- [4] J. Peters, *et al.*, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **622**, 1823 (1996).
- [5] L. Zhao *et al.*, *Nature* **508**, 373 (2014).

高 Ge 組成 SiGe 薄膜の液浸ラマンスペクトルに現れるブロードピークの温度依存性評価

Temperature Dependence of Broad Peaks Derived from Ge-rich SiGe Thin Films

by Oil-Immersion Raman Spectroscopy

○前田 唯葉¹, 横川 凌^{1,2}, 小椋 厚志^{1,2}

(1. 明治大理工, 2. 明治大 MREL)

○Y. Maeda¹, R. Yokogawa^{1,2}, and A. Ogura^{1,2}

(1. Meiji University, 2. MREL)

E-mail: ce231068@meiji.ac.jp

【背景・目的】SiGe は、Si よりも高いキャリア移動度を有し、合金散乱により熱伝導率が低い等の利点から、次世代デバイス材料として期待されている。デバイス応用に向けて、組成や歪、熱特性等の最適化が重要であり、ラマン分光法は、これらの特性評価に有効な測定手法の一つである[1]。先行研究では、液浸ラマン分光法により得られた SiGe 薄膜のラマンスペクトルにおいて、Ge-Ge 振動モードの低波数側に特徴的なブロードピークを観測した[2]。このブロードピークは、表面フォノンに起因し、SiGe の局所領域の物性を反映していると考えられるが[3]、SiGe の熱特性との関係は未だ明らかになっていない。本研究では、液浸ラマン分光法を用い、高 Ge 濃度 SiGe 薄膜のラマンスペクトルに現れるブロードピークの温度依存性を評価した。

【実験】試料は (001)Ge 基板上に、SiGe 膜をエピタキシャル成長させた $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Ge}$ ($x=75.0, 85.2, 91.8\%$) を用いた。SiGe 膜は、歪緩和と欠陥の発生を抑制するため、臨界膜厚以下で成長させた。液浸ラマン分光測定には、励起光源に波長 532 nm の可視光レーザー、焦点距離 2,000 mm の分光器を用いた。液浸レンズの開口数およびオイルの屈折率はそれぞれ 1.4、1.5 とした。レーザーパワーは 1 mW から 9 mW まで 2 mW 刻みで変化させ、ブロードピークのレーザーパワー(温度)依存性を評価した。

【結果・考察】Ge 組成が異なる 3 つの試料におけるブロードピークのスペクトルを Fig. 1 に示す。Ge 組成の増加に伴い、ブロードピークの強度は減少し、ブロードピークと Ge-Ge mode のスペクトル強度比は Ge 組成と線形関係を示した。ブロードピークのレーザーパワー依存性を Fig. 2 に示す。レーザーパワーの増加に伴い、光学フォノンモードと同様にブロードピークは低波数側へシフトした。これは、結晶の熱膨張による周波数の低下に起因するものだと考えられる。また、ブロードピークのシフト量は Ge-Ge mode よりも大きいことから、ブロードピークは表面の温度変化に敏感であることを示唆している。以上より、高 Ge 濃度 SiGe 薄膜から得られたラマンスペクトルに現れるブロードピークにおいても、温度依存性を有することが明らかになった。本研究から、液浸ラマン分光法を用い、ブロードピークに着目することにより、複雑なデバイス構造や歪の影響を排除して SiGe 混晶の熱特性評価を実現できると考える。

【謝辞】本研究の一部は科研費(21K14201)の補助を受けたものである。

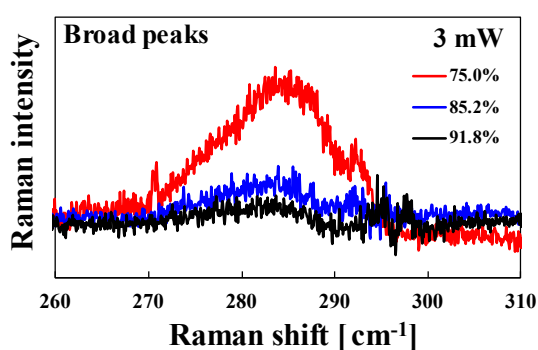


Fig. 1 Broad peaks spectra from three samples with different Ge fractions.

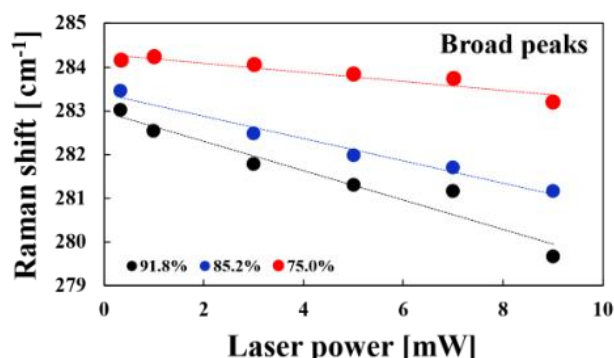


Fig. 2 Laser power dependence of Raman shift for broad peaks.

【参考文献】

- [1] B. Stoib *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104**, 161907 (2014).
- [2] D. Kosemura *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 026602 (2016).
- [3] K. Takeuchi *et al.*, Appl. Phys. Express. **9**, 071301 (2016).

金属-半導体マイクロ円環構造の加熱による 縦光学フォノン共鳴輻射

Study on Longitudinal Optical Phonon Resonance Radiation from Heating of Metal-Semiconductor Microcircular Structures

千葉大院工 ○貴志優彦, Hnin Lai Lai Aye, 吉川大樹, 石谷善博

Chiba Univ, Masahiko Kishi, Hnin Lai Lai Aye, Daiki Yoshikawa, Yoshihiro Ishitani

Email: Ishitani@faculty.chiba-u.jp

これまで我々は、半導体結晶表面に形成した金属のライン&スペース（グレーティング）構造の加熱によりテラヘルツ～中赤外発光が得られることを報告した[1]。この発光は、金属に挟まれた半導体領域におけるコヒーレントな LO フォノンに由来する界面分極電荷による電気双極子に由来すると考えられる。また、前回の報告では、金属-半導体マイクロドット構造におけるドットの縦幅のサイズ依存性があることを確認し、ドットの縦幅が $10\ \mu\text{m}$ の場合は垂直方向と平行方向の両方での発行が確認され、偏光制御の可能性が確認された。一方で $6\ \mu\text{m}$ の場合は垂直方向と平行方向の両方で発光の消失を確認し、ドット構造内に電気四重極子が生じている可能性を示した。本研究では、同様に偏光制御を目的として円環構造を始めとした2次元構造における発光の観測を試みた。

アンドープ GaAs 基板上にレジストを塗布し、フォトリソグラフィ法により1次元および2次元グレーティング構造を形成した。放射窓部の幅は $2\ \mu\text{m}$ の円環であり、内径が $8\ \mu\text{m}$ 、外径が $12\ \mu\text{m}$ 、その他の領域に厚さ $50\ \text{nm}$ の Au をスパッタリング法で成膜した。図1に円環構造について模式図を示す。サンプルの発光測定では、試料を $630\ \text{K}$ に加熱し、放射は偏光子を区別せず FTIR 分光高度計および TGS 検知器により計測された。図2に発光スペクトルを示す。LO フォノン周波数において発光ピークが確認される。この円環構造は上下左右対称であることから偏光依存性がなくなったことを示唆していると考えられる。これまでの研究より、ドットの縦幅が $10\ \mu\text{m}$ の場合は偏光依存性がないことは確認されていたが、四重極子の影響でピークが小さかった。これに対し、円環構造の場合ではピークを維持して偏光依存性のない発光が観測されることがわかった。

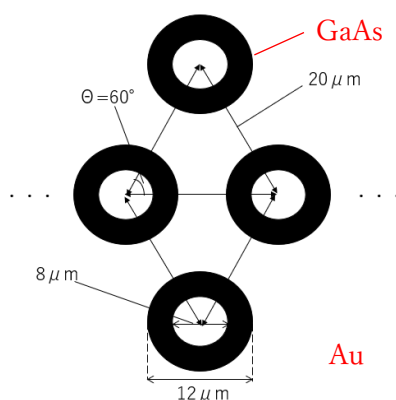


図1 円環構造デバイスの模式図

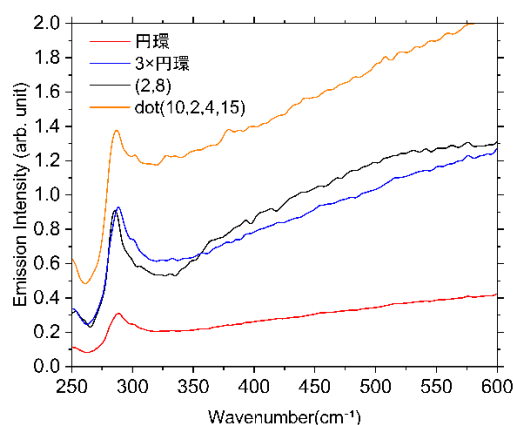


図2 630K における発光スペクトル
カッコ内は(半導体幅,金属幅)に対応
いずれも偏光子はなし

[1] Y. Ishitani *et al.* Appl. Phys. Lett. **113**, 192105 (2018)

Exploration of mid-infrared thermal radiation mechanisms at longitudinal-optical phonon energy via u-GaAs/Au mesa-type surface stripe structures

Hnin Lai Lai Aye¹, Masahiko Kishi¹, Daiki Yoshikawa¹ and Yoshihiro Ishitani¹

¹ Chiba University, 1-33 Yayoicho, Inage ward, Chiba 263-8522, Japan

Email: ishitani@faculty.chiba-u.jp

Light emission or absorption at terahertz (THz) – tens of THz frequency range had been investigated through inter-sub-band transitions in quantum wells and resonant tunneling of electrons. Because of smaller interaction energy width with the radiation field in phonon system than that in electronic system, greater optical gain of oscillation at room temperature is observed and operation of THz radiation at higher temperatures is possible using phonons. THz emission based on surface phonon polaritons (SPhPs) has been explored using various micro/nano structures although careful selections of emission direction and geometric conditions are indispensable. Unlike SPhPs, we have reported thermal radiation at 8.5THz resonant with longitudinal optical (LO) phonon from undoped (u-) GaAs/Au surface micro stripe structures^[1]. Here, we will discuss distinctive characteristics of LO resonant thermal radiation by adopting narrow window of less than 1 μ m stripe structures under the condition of improving LO phonon coherence.

In this study, photolithography process was performed on undoped GaAs substrates followed by chemical etching to fabricate mesa height of stripe lines, followed by the deposition of metal on stripe patterns. Infrared emission measurements were observed for the polarization perpendicular to the stripe and parallel to the stripe using a Fourier transform IR spectrometer at 450 – 630 K.

The origin of LO phonon resonant thermal emission of radiation (LORE) comes from electric dipoles formed by coherently oscillating polarization charges at GaAs/As interface. One main factor affecting LORE intensity is the magnitude of the electric dipole, which is fundamentally concerned with the GaAs emission window. This also becomes a reason for greater LORE in narrow emission window with low mesa-type (mesa range, $H = 0 \sim 0.7 \mu\text{m}$) structures, in which the formation of higher electric flux around the mesa region is involved (Fig.1). On the other hand, LORE intensity significantly decreases at high mesa structures ($H > 1 \mu\text{m}$), especially at wide emission window. This phenomenon is due to the reabsorption of emitting radiation causing the extension of the effective radiative lifetime, which in turn increases the nonradiative LO phonon annihilation process^[2]. This extended longer radiative lifetime is exhibited as a decrement in FWHM (Fig. 2). In addition, LORE intensity of 0.62 μm of GaAs width is found to be decreasing due to smaller dipole moment by narrower emission width and its drop in FWHM suggests that radiative lifetime becomes longer in smaller dipole-occupied volume.

Acknowledgment: This research was partly supported by Iketani Science and Technology Fund 0331065-A.

[1] Y. Ishitani, *et al.*, Appl. Phys. Lett.**113**,192105 (2018) [2] Hnin Lai Lai Aye *et al* IR Phys.Techno.**134**,104924 (2023)

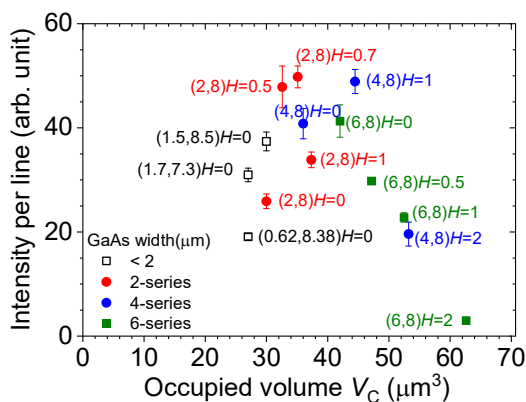


Fig.1 Emission intensity vs effective volume of the dipole. The utilized photo-mask size and mesa height are indicated.

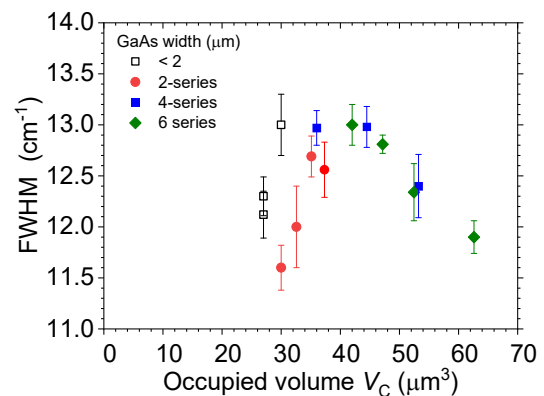


Fig.2 Emission line width relative to the effective dipole-occupied volume.

ハイスループットな時間分解サーモリフレクタンス技術の開発

Development of the High-Throughput time-domain thermorefectance technique

産総研¹, ○有馬 寛人¹, 山下雄一郎¹, 八木 貴志¹

AIST¹, °Hiroto Arima¹, Yuichiro Yamashita¹, Takashi Yagi

E-mail: h-arima@aist.go.jp, yuichiro-yamashita@aist.go.jp, t-yagi@aist.go.jp

時間領域サーモリフレクタンス(TDTR)法は薄膜の熱物性値を得るための手法として広く利用されている。薄膜の表面を加熱用パルスレーザーで加熱し温度を変化させると、表面の反射率は温度に依存した応答(サーモリフレクタンス)を示す。TDTR 法では、加熱用パルス光と測定用プローブ光の薄膜表面までの到達時間の差を制御し、温度の時間変化を計測し、適切なモデルの熱伝導方程式を基に解析することで熱物性値を得る[1]。しかし、従来の TDTR 法は計測と解析に数時間程度の時間を要するため、迅速な研究遂行のボトルネックとなっていた。そこで最近、我々のグループでは短時間での計測と解析が行える、ハイスループット化した HT-TDTR の開発を進めている。HT-TDTR 法の計測の基本的な原理は、波長ごとにそれぞれ異なるディレイを与えたパルス光を薄膜表面に入射させ、表面の反射光の強度を波長ごとに計測することで、到達時間差における温度を一度に取得する。一方で解析においては、サーモリフレクタンス信号の時間変化曲線を教師データに用いた機械学習を進めている。本講演では、HT-TDTR 法の開発の現状について紹介する。

[1] P. Jiang *et al.*, J. Appl. Phys. **124**, 161103 (2018)

Thermospectroscopic imaging and thermophysical property measurement of PCM in the textile-replicated MEMS structure

A. Khayala¹, M. Ryu³, K. Shuji², R. Li Voti¹, J. Morikawa²,

¹Department of Science Based Applications for Engineering, Sapienza Università di Roma, Via Antonio Scarpa 16, 00161 Rome, Italy, ² School of Materials and Chemical Technology, Tokyo Institute of Technology, Ookayama, Meguro, Tokyo 152-8552, Japan ³ National Institute of Advanced Science and Technology, Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8560 Japan

E-mail: khayala.agharahimli@uniroma1.it, morikawa.j.aa@m.titech.ac.jp

Thermospectroscopic imaging is MIR range imaging technique that enables simultaneous detection of the thermal emission and the transmission or reflection spectrum distribution^{[1], [2]}. This technique can determine the heat diffusion process and the structural change at the same time, and it is profitable especially for the dynamic process, such as the phase transition. This study provides analysis of thermal properties of phase changing material (PCM) composed of alkane compounds in textile-replicated MEMS structures for the analysis of heat transfer phenomena in PCM loaded smart textile. The investigation is centered on understanding the transmittance and absorption of the PCM, which are crucial for its application in thermal management systems. Infrared (IR) spectroscopy and thermal imaging method is utilized for simultaneous measurement of IR transmittance spectra and thermal images, allowing for the observation of the thermoregulation effects of the PCM.

Moreover, the thermal diffusivity of the PCM is measured using method temperature wave analysis (TWA), a novel technique that offers precise quantification of the rate at which heat spreads through material. This measurement is critical for determining the PCM's effectiveness in applications requiring rapid heat absorption and release.

[1] M. Ryu, M. Romano, J.C. Batsale, C. Pradere, J. Morikawa, "Microscale

spectroscopic thermal imaging of n-alkanes", *Quantitative InfraRed Thermography J.*, **10**.21611 (2016) [2]

M. Ryu, J. Kimber, T. Sato, R. Nakatani, T. Hayakawa, M. Romano, C. Pradère, A. Hovhannisyan, S. Kazarian, J. Morikawa, " Infrared thermo-spectroscopic imaging of styrene radical polymerization in microfluidics", *Chem. Eng. J.*, **324**, 259-265 (2017).

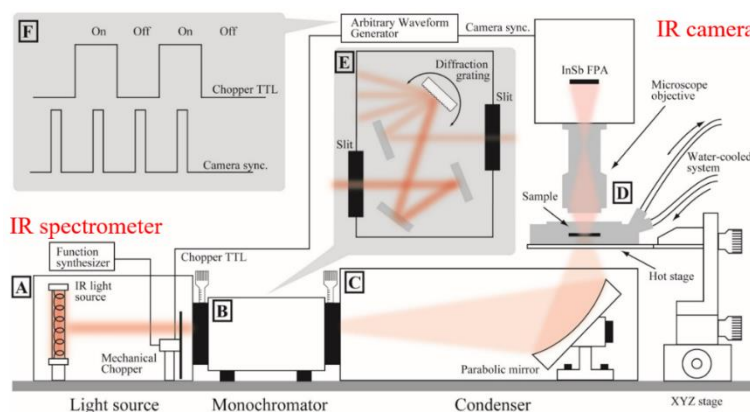


Figure 1 Measuring setup for simultaneous microscopic measurements of thermal and spectroscopic image in mid Infrared wavelength. (A) Ceramic heater (light source), (B) grating monochromator to select the IR wavelength, (C) condenser module with a parabolic mirror, (D) thin hot stage acting also as a sample holder place in a XYZ stage and the IR camera. (E) Schematic explanation concerning the functioning of the monochromator. (F) Synchronization module based on the arbitrary waveform generator:

22 Joint Session M "Phonon Engineering" Oral presentation : 22.1 Joint Session M "Phonon Engineering"

[19p-D62-1~17] 22.1 Joint Session M "Phonon Engineering"

[19p-D62-1]

[The 56th Young Scientist Presentation Award Speech] Control of spontaneous phonon emission in single defect centers using phononic crystals

○Kazuhiro Kuruma^{1,2}, Benjamin Pingault^{1,3}, Cleaven Chia¹, Michael Haas¹, Graham D Joe¹, Daniel Rimoli Assumpcao¹, Sophie Weiyi Ding¹, Chang Jin¹, C. J. Xin¹, Matthew Yeh¹, Neil Sinclair¹, Marko Loncar¹ (1.Harvard Univ., 2.RCAST, Univ. of Tokyo., 3.Delft Univ.)

[19p-D62-2]

Design of multiple-resonant phononic-structural acoustic metasurfaces for sound absorbing and energy harvesting devices

○(M2)Akira Kojima¹, Yuri Fukaya¹, Kenji Tsuruta¹ (1.Okayama Univ.)

[19p-D62-3]

Automated tailoring of the phonon dispersion for highly anisotropic phononic crystal

○(P)Michele Diego¹, Matteo Pirro¹, Byunggi Kim¹, Roman Anufriev¹, Masahiro Nomura¹ (1.IIS, Univ. of Tokyo)

[19p-D62-4]

Control of Diffusion Direction between Unit Cells Using Topological Edge Modes

○Keita Funayama¹, Jun Hirotani², Atsushi Miura¹, Hiroya Tanaka¹ (1.Toyota Cent. Labs., 2.Kyoto Univ.)

[19p-D62-5]

Validation and Application of Thermoreflectance and Gibbs Excess Methods

○Ryohei Nagahiro¹, Kosuke Maeda¹, Eleonora Issota², Shizhou Jiang², G. Jeffrey Snyder², Oluwaseyi Balogun², Junichiro Shiomi¹ (1.Univ. Tokyo, 2.Northwestern Univ.)

[19p-D62-6]

Laser Heterodyne Photothermal Displacement Method for Measuring the Thermal Boundary Conductance of Controlled Grain Boundaries of Si

○Tomoki Harada¹, Kentaro Kutsukake², Noritaka Usami², Tetsuo Ikari¹, Atsuhiko Fukuyama¹ (1.Univ. of Miyazaki, 2.Nagoya Univ.)

[19p-D62-7]

CeO₂-based Electrochemical Thermal Transistors: CeO₂ Thickness Dependence of Thermal Conductivity

○(PC)Ahrong Jeong¹, Zhiping Bian², Mitsuki Yoshimura², Hyeonjun Kong², Yusaku Magari¹, Hiromichi Ohta¹ (1.RIES-Hokkaido Univ., 2.IST-Hokkaido Univ.)

[19p-D62-8]

Effect of Capping Layers on CeO₂-based Electrochemical Thermal Transistors

○(D)Hyeonjun Kong¹, Jason Tam², Zhiping Bian¹, Mitsuki Yoshimura¹, Ahrong Jeong³, Bin Feng², Yuichi Ikuhara², Yusaku Magari³, Hiromichi Ohta³ (1.IST-Hokkaido U., 2.U. Tokyo, 3.RIES-Hokkaido U.)

[19p-D62-9]

Properties of LnO_2 (Ln = Ce, Pr, Tb) -based Solid-State Electrochemical Thermal Transistors

○(M2) Mitsuki Yoshimura¹, Jason Tam², Zhiping Bian¹, Hyeonjun Kong¹, Ahrong Jeong³, Bin Feng², Yuichi Ikuhara², Yusaku Magari³, Hiromichi Ohta³ (1.IST-Hokkaido Univ., 2.U. Tokyo, 3.RIES-Hokkaido Univ.)

[19p-D62-10]

Thermal transport properties of a boric acid single crystal with a strong two-dimensional hydrogen bonding network

○Ryosuke Takehara¹, Natsuki Kubo¹, Meguya Ryu², Junko Morikawa¹, Tomoyuki Akutagawa³, Takanori Fukushima¹ (1.Tokyo Tech, 2.AIST, 3.Tohoku Univ.)

[19p-D62-11]

Thermal conduction in transition metal dichalcogenide moiré superlattices

○BIN XU¹, Meng An¹, Satoru Masubuchi², Tomoki Machida², Junichiro Shiomi¹ (1.Univ. Tokyo, 2.IIS. Univ. Tokyo)

[19p-D62-12]

Optimizing cryogenic graphene: how Golomb ruler-designed isotope interfaces suppress thermal transport

○(P)Xin Wu^{1,2}, Zheyong Fan³, Sebastian Volz^{1,4}, Qiang Han², Masahiro Nomura¹ (1.Univ. of Tokyo, 2.SCUT, 3.Bohai Univ., 4.LIMMS)

[19p-D62-13]

Thermal conductivity measurement of CNT assemblies using 1D thermal diffusion simulation

○Haruto Kurono¹, Hisashi Sugime², Hiromu Hamasaki¹, Takayuki Nakano¹, Hiroya Ikeda¹, Yoku Inoue¹ (1.Shizuoka Univ., 2.Kindai Univ.)

[19p-D62-14]

Study of thermal resistance at the metal-CNT interface by transient thermal response measurements

○KOSUKE HAYASHI¹, TAKAYUKI NAKANO¹, YOKU INOUE¹ (1.Shizuoka Univ.)

[19p-D62-15]

Investigation of the Phonon Decay Length in a SiO_2 Layer Having a SiO_2/Si Interface Using Superconducting Devices

○(M2) Tatsuya Iizuka¹, Jutarat Tanarom¹, Yoshinao Mizugaki¹, Hiroshi Shimada¹ (1.UEC)

[19p-D62-16]

Interfacial Phonon Bridging Effect at the Transition Layer of Amorphous Oxides Hetero-interfaces: A Molecular Dynamics Study

○(M2) Yusuke Nishimura¹, Rukuto Watanabe¹, Takanobu Watanabe¹ (1.Waseda Univ.)

[19p-D62-17]

Development of high-efficiency thermal switching devices with heat pumping effect

○(M2) Reiji Toida¹, Tsunehiro Takeuchi¹, Masaharu Matsunami¹, Keisuke Hirata¹ (1.Toyota Tech. Inst.)

フォノニック結晶を用いた単一欠陥中心のフォノン自然放出の制御

Control of spontaneous phonon emission in single defect centers using phononic crystals

Harvard Univ.¹, 東大先端研², Delft Univ.³, 〇車一宏^{1,2}, Benjamin Pingault^{1,3}, Cleaven Chia¹, Michael

Haas¹, Graham D Joe¹, Daniel Rimoli Assumpcao¹, Sophie Weiyi Ding¹, Chang Jin¹, C. J. Xin¹,

Matthew Yeh¹, Neil Sinclair¹, and Marko Lončar¹

Harvard Univ.¹, RCAST, Univ. of Tokyo.², Delft Univ.³, 〇K. Kuruma^{1,2}, B. Pingault^{1,3}, M. Haas¹, G. D Joe¹, D. R.

Assumpcao⁴, S. W. Ding⁵, C. Jin⁴, C. J. Xin¹, M. Yeh¹, N. Sinclair¹, and M. Lončar¹

E-mail: kkuruma@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

はじめに 単一量子系とフォノンとの相互作用の制御は、次世代の量子情報を担う要素技術である。一般的に熱フォノンはノイズやデコヒーレンスのソースとなるため、これまで主に極低温下での動作[1]によってフォノンを抑制する手法が取られてきたが、量子系との相互作用に必要な局所的なフォノンの制御が困難といった問題があった。本研究では、フォノンの局所状態密度を制御する手法として、高周波数領域 (50~70 GHz) に完全バンドギャップを持つダイヤモンドフォノニック結晶を提案し、その作製に成功した。またフォノニック結晶のバンドギャップ効果を用いて、ダイヤモンド中のシリコン-空孔 (SiV) センターにおける高周波数 (~50 GHz) の単一フォノン自然放出・吸収過程の制御に成功したため報告する[2]。

実験結果 図 1(a)と(b)は、単結晶ダイヤモンド基板上に作製した 1 次元フォノニック結晶 (ビーム厚さ=70 nm、格子定数=130 nm、楕円の長辺/短辺=96/90 nm、接続リンク幅~20 nm)の走査型電子顕微鏡(SEM)像と計算により求めたバンド構造である。マスクインプランテーション法により単一 SiV がフォノニック結晶デバイスの中心に埋め込まれている。SiV の軌道寿命(T_{orbit})を調べるため、ポンプ-プローブ法(4.4K, パルス長さ 300 ns、波長~737 nm)を行った。図 1(c)にフォノニック結晶、バルク、ナノビーム中の SiV における T_{orbit} の基底状態分裂幅(Δ_{GS})依存性の結果を示す。

フォノニック結晶中の T_{orbit} はバルク(ナノビーム)と比べて、約 18(15)倍長くなることが分かった。また、バンドギャップ中の T_{orbit} はバルク・ナノビームと比較して長寿命化する傾向がみられ、バンドギャップ外ではバルクと同程度の寿命であることから、作製したフォノニック結晶は 50~70 GHz 帯にバンドギャップを持ち、SiV 中の単一フォノン自然放出・吸収過程が抑制され

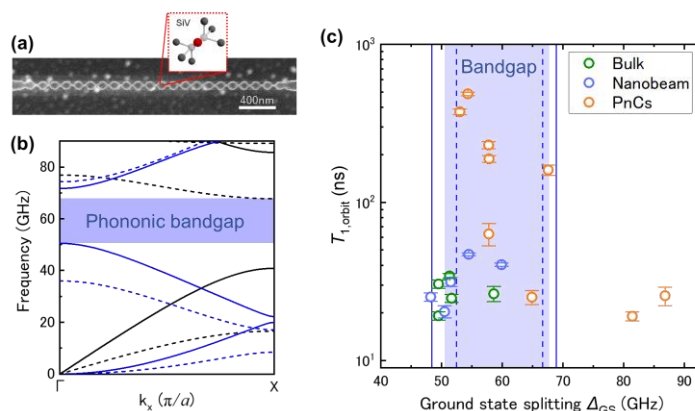


Fig.1. (a) SEM image of a fabricated 1D PnC in diamond. (b) Calculated bandstructure of the fabricated PnC. (c) Summary of measured orbital lifetimes (T_{orbit}) for SiVs in PnC (orange), nanobeam (blue) and bulk (green) as a function of ground state splitting (Δ_{GS}) of SiVs.

たことが分かった。本講演では、実験の詳細と今後の展望について議論する。

参考文献 [1] Sukachev, D. D. et al., Phys. Rev. Lett. 119, 223602 (2017). [2] K. Kuruma, et al., arxiv, arxiv:2310.06236 (2023).

複数共鳴フォノニック構造の音響メタ表面を用いた 吸音・環境発電デバイスの設計

Design of multiple-resonant phononic-structural acoustic metasurfaces for sound absorbing and energy harvesting devices

岡山大院環境生命自然¹ ○小島 章¹, 深谷 優梨¹, 鶴田 健二¹

Okayama Univ.¹ ○Akira Kojima¹, Yuri Fukaya, Kenji Tsuruta¹

E-mail: tsuruta@okayama-u.ac.jp

環境問題対策の一つとしての防音・遮音技術においては、軽量で薄く、かつ高い吸音性を持つ材料が求められ、それを実現する音響メタ表面が注目されている。我々は、音響メタ表面の一つである装飾膜共振器(Decorated Membrane Resonator, 以下 DMR)^[1]と呼ばれるデバイスに着目し、その多機能化を試みている^[2]。DMR は共振作用によって 100%に近い吸音を行うことができるが、狭帯域であり、膜が露出することで外部からの衝撃で破損しやすいという問題点がある。本研究では DMR と他の共振器を結合させた構造によって DMR の広帯域化および強度の改善を試みた。加えて、共振時の DMR 内部での音圧増幅に着目し、環境発電への応用についても検討を行った。具体的には、ヘルムホルツ共振器構造^[3]の内部に DMR を付加、ならびに開口部への音波の局在化を目的としたピラーの周期配列^[4]の二つのアプローチで設計した。図 1(a)に設計した音響メタ表面の構造を示す。3次元有限要素解析により、図 1(b)に示す 500Hz ~ 4000Hz の周波数帯での吸音率・発電特性の周波数スペクトルが得られた。それぞれのピークにおいて内部音圧分布や膜共鳴の異なるモードが励起されていることが確認できた。従って、複合化した各共振構造がそれぞれ独立した共振作用を示すことにより複数の共振周波数が出現したと考えられる。また、吸音と発電のピークは同じ周波数であることが確認でき、複数の周波数帯において高い吸音効果と環境発電が両立できることを実証した。

さらに、音波の入射角を変化させた場合についても解析を行い、垂直入射と同様の共振が励起され、従って広い入射角で所望の機能を発現できるよう最適設計を行った。図 2(a)に共振時の音圧分布の様子を示す。講演では、この構造を周期的に並べる「複数共鳴フォノニック構造」(図 2(b))の解析結果も報告する。

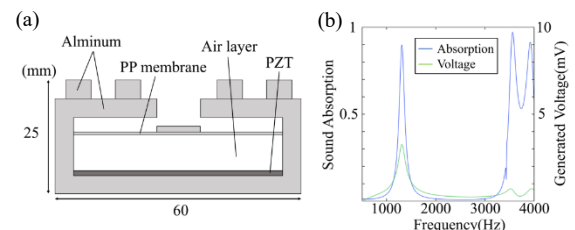


図 1. (a) 複数の共鳴機構を持つ音響メタ表面, (b) 吸音・発電スペクトル

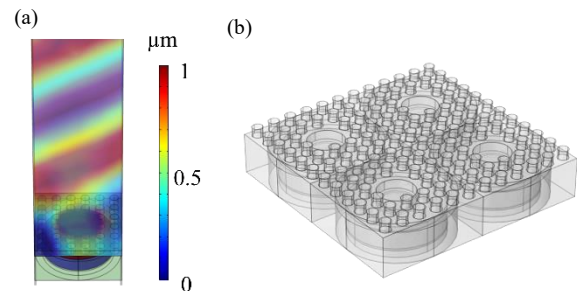


図 2. (a) 斜め入射に対する応答, (b) 周期配列構造

謝辞：本研究の一部は科学研究費補助金(JP21H05020)の支援のもとで実施された。

参考文献

- [1] G. Ma *et al.*, Nature Mater **13**, 873(2014)
- [2] K. Watanabe, M. Fujita, and K. Tsuruta, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SKK06(2020)
- [3] X. Zhang *et al.*, Smart Mater. Struct. **27** 105018(2018)
- [4] S. Qi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 263501(2016)

Automated tailoring of the phonon dispersion for highly anisotropic phononic crystal

IIS, The Univ. of Tokyo¹

[○]Michele Diego^{1*}, Matteo Pirro¹, Byunggi Kim¹, Roman Anufriev¹ and Masahiro Nomura¹

*email: diego@iis.u-tokyo.ac.jp

Controlling acoustic/phononic properties at the nanoscale is crucial across numerous fields, spanning from thermal transport, mechanical resonators and nano-sensing to quantum technologies. In recent years, phononic crystals have emerged as a highly advantageous class of structures for tailoring phononic properties in advanced devices. However, the current design of phononic crystals often rely on conventional shapes and follow simple rules based on human intuition. In this work, we experimentally demonstrate an automated way to design phononic crystals, exploiting an inverse design method called genetic algorithm [1]. With this method, the desired phononic properties are input into the algorithm, which automatically identifies the optimal structural design to meet these specific requirements. This enables the discovery of shapes beyond traditional human-made structures, resulting in crystals with unique properties. In this case, we optimize a two-dimensional phononic crystal to exhibit high phononic anisotropy along different directions of the crystal. Subsequently, we fabricate the structure by means of clean room techniques and experimentally validate the predicted high anisotropy using Brillouin light scattering spectroscopy.

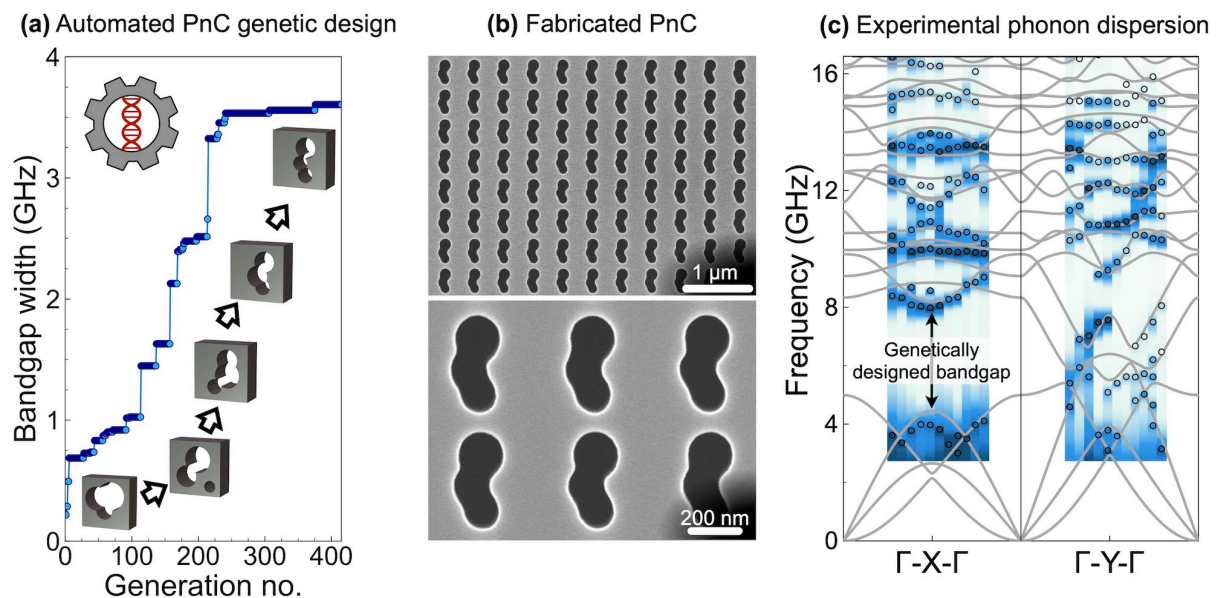


Fig.1 Automated design and experimental validation of the highly anisotropic phononic crystal

a. Evolution of the genetically designed phononic crystal to achieve large unidirectional bandgap. **b.** Fabricated sample with the optimized design **c.** Comparison between the designed phonon dispersion relation (gray lines) and Brillouin light scattering measurements (blue color and circles).

References

[1] M. Diego, M. Pirro, B. Kim, R. Anufriev and M. Nomura, *Tailoring Phonon Dispersion of Genetically Designed Nanophononic Metasurface*, **ACS Nano** (accepted).

Acknowledgements

This work was supported by JST Moonshot R&D grant (JPMJMS2062), by the JSPS KAKENHI Research Activity Start-up (Grant Number JP23K19196) and by the JSPS KAKENHI (Grant Number JP23KF0203).

トポロジカルエッジモードを用いた単位格子間拡散方向の制御

Control of Diffusion Direction between Unit Cells Using Topological Edge Modes

(株)豊田中央研究所¹, 京都大学² ○舟山 啓太¹, 廣谷 潤², 三浦 篤志¹, 田中 宏哉¹

Toyota Central R&D Labs., Inc.¹, Kyoto University², ○Keita Funayama¹, Jun Hirotsu²,

Atsushi Miura¹, Hiroya Tanaka¹

E-mail: funayama@mosk.tytlabs.co.jp

【はじめに】 近年、トポロジカル絶縁体の概念が拡散現象にも応用され、特に熱拡散系において熱局在性の発現やパリティ時間対称性に関連する設計論が実証されてきた。今後、トポロジカル拡散系に関する理解が進むことで、異方性熱拡散の実現が期待されている。本発表では、2種類の六員環構造体が成す境界上に生じるエッジモード発現時において、六員環単位格子間における熱流伝搬の異方性について数値的に検討した結果を報告する[1]。

【方法】 拡散系の数値計算モデルは有限要素法ソフトウェア (COMSOL) を用いて作成した。構造体を形成する全ての部材はアルミニウム製とした。六員環の頂点には直径 20mm、厚さ 10mm の円柱を配置した。六員環単位格子内の隣り合う円柱は拡散係数 D_1 、隣り合う単位格子同士は拡散係数 D_2 の梁で接続された。 D_1 と D_2 の比により、スペクトル内のバンドギャップ上下のモードが反転し、2種類の状態が作成される。この2種類の六員環構造の境界にはトポロジカル的に保護された熱減衰率を有する特異な熱分布が生じる。この熱分布を初期状態として有限構造体中の円柱に与え、時間発展解析を行った。

【結果】 有限構造体上に異なるエッジモード (モード A、モード B) の熱分布を与えた際の、 $t=0$ s (初期状態) と $t=40$ s 時の熱分布を図 1 に示す。モード A の熱分布では、単位格子間では右から左に向かう水平方向の熱流のみが生じ、時間経過に伴い右端が冷却され、左端が加熱された (図 1(a))。モード B では下から上へ向かう垂直方向の熱流のみが生じ、時間経過に伴い下端が冷却され、上端が加熱された (図 1(b))。

【まとめ】 トポロジカル絶縁体の概念を二次元熱拡散系に応用することで、単位格子間の熱流を水平方または垂直方向に限定し、トポロジカル絶縁体による異方性拡散実現の可能性を示した。

【参考文献】

- [1] K. Funayama et al., *Commun. Phys.* **6**, 364 (2023).

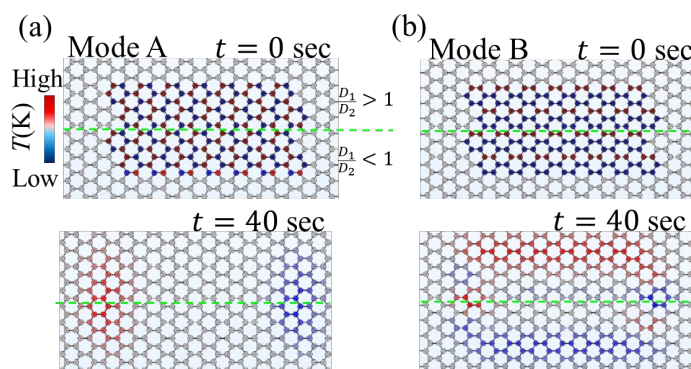


Fig. 1 Thermal distributions on the structure of $t=0$ s and 40s for the excitation of (a) mode A and (b) mode B.

サーモリフレクタンス法と Gibbs Excess モデルの検証とその応用

Validation and Application of Thermoreflectance and Gibbs Excess Methods

東大工¹, Northwestern 大² °永廣怜平¹, 前田晃輔¹, Eleonora Isotta², Shizhou Jiang, G. Jeffrey Snyder², Oluwaseyi Balogun², 塩見淳一郎¹

Univ. Tokyo¹, Northwestern Univ.², °Ryohei Nagahiro¹, Kosuke Maeda¹, Eleonora Isotta², Shizhou Jiang², G. Jeffrey Snyder², Oluwaseyi Balogun², Junichiro Shiomi¹

E-mail: shiomi@photon.t.u-tokyo.ac.jp

微細欠陥構造、特に多結晶体における粒界・界面は、フォノン散乱により材料の熱伝導率を著しく低下させることが知られている。この界面の局所的な熱流の影響は、界面熱抵抗（Thermal boundary resistance, TBR）で表され、材料の熱輸送特性を理解する上で重要な物性である。近年、サーモリフレクタンス法（Thermoreflectance, TR）による熱伝導率測定と後方電子散乱を組み合わせにより、個々の界面構造と局所熱輸送特性の解析が報告されている^{[1][2]}。本グループでは、このような熱伝導率マッピングから TBR を定義する Gibbs Excess 法を用いることにより、局所構造と TBR の関係や界面の不均一性について議論してきた^[3]。Gibbs Excess 法により得られる TBR は、これまでに報告されている文献値に近く、モデルとしては十分に有用である。一方で、この比較は必ずしも同一の界面ではなく、モデルの検証としては不十分である。そこで本研究では、Si ウェーハを接合した均質な界面について、従来の TR 法と Gibbs Excess 法により同一界面で得られる TBR の比較、検証を行う。また、その Gibbs Excess 法を用いて多結晶 Si の界面について TR 法を用いた熱伝導率マッピングから直接的に測定した TBR について発表を行う。

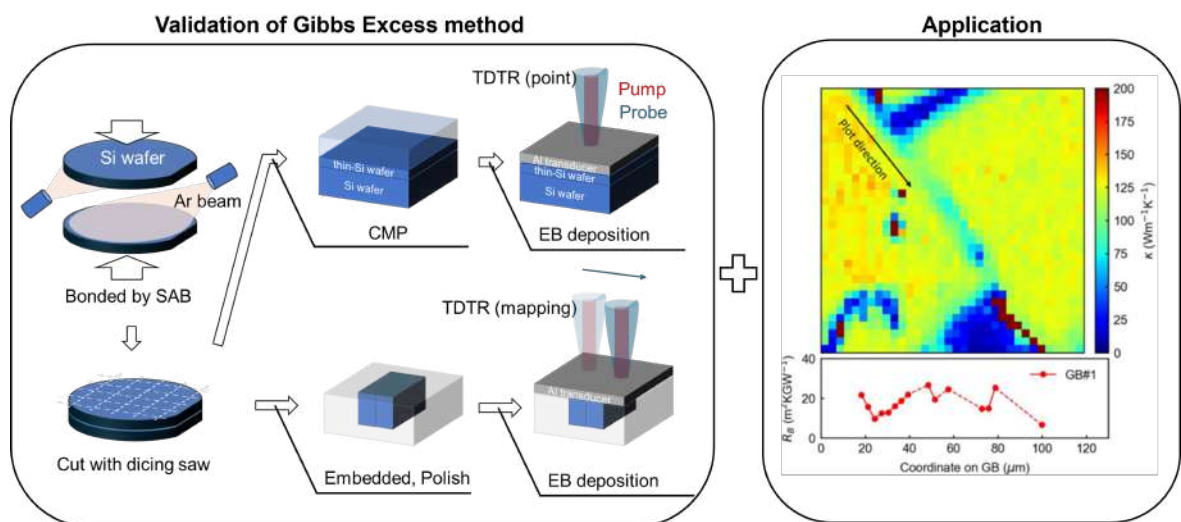


Figure 1. Schematic of validation methods for Gibbs excess methods, and an example of thermal conductivity imaging of spark-plasma sintered sample and TBR plot along a GB coordinate.

Reference: [1] Sood, A. et al., Nano Lett. 18 (2018), 3466–3472. [2] Isotta, E. et al., Adv. Mater. 35 (2023), 2302777. [3] E. Isotta, S. Jiang, ..., R Nagahiro, K. Maeda, ..., J. Shiomi, G. J. Snyder, O. Balogun, Adv. Funct. Mater., (2024), Accepted.

光ヘテロダイン光熱変位法による 人工的に制御した Si 粒界構造の界面熱コンダクタンス測定

Laser Heterodyne Photothermal Displacement Method for Measuring the Thermal Boundary Conductance of Controlled Grain Boundaries of Si

宮崎大工¹, 名大² ◯原田 知季¹, 沓掛 健太郎², 宇佐美 徳隆², 碓 哲雄¹, 福山 敦彦¹

Univ. of Miyazaki¹, Nagoya Univ.², ◯Tomoki Harada¹, Kentaro Kutsukake², Noritaka Usami²,

Tetsuo Ikari¹, Atsuhiko Fukuyama¹

E-mail: harada.tomoki.q5@cc.miyazaki-u.ac.jp

【はじめに】多結晶材料の特性はミクロな粒界によって決定されるため、個別の粒界の性質を明らかにすることは、多結晶材料の高性能化に資する。しかし、これまで粒界の界面熱コンダクタンス(TBC)は実測された例が少ないなど、粒界構造を体系的に用意して測定された例はなかった。本研究では粒界のマクロな構造のパラメータである傾角 α 、非対称角 β および成長方向からのずれ角 θ の3つを意図的に制御した試料を用意し、光ヘテロダイン光熱変位(LH-PD)法を用いて粒界のTBCを算出した。

【試料詳細と実験方法】方位の異なる種結晶を複数用いる独自の結晶育成手法^[1]により1試料に1つの粒界を持ち、粒界の3つの要素 α 、 β と θ を意図的に変化させたSi試料を用意した。

LH-PD法は励起光照射による熱膨張変位をヘテロダイン干渉計で検出する手法である。励起光と検出光の照射位置をそれぞれ個別に制御することで、粒界を跨いだ測定が可能である。試料には粒界から10 μm 離れた位置に20 \times 20 μm のAl膜を形成し、その中心に励起光を照射した。粒界を跨いで励起光から40 μm 離れた位置に検出光を照射し変位量を測定した。また、同法は変位量の時間変化を測定可能であり、その時間変化にTBCの情報が含まれる。このため、実験結果を再現した数値計算によるフィッティングから粒界のTBCを算出できる。

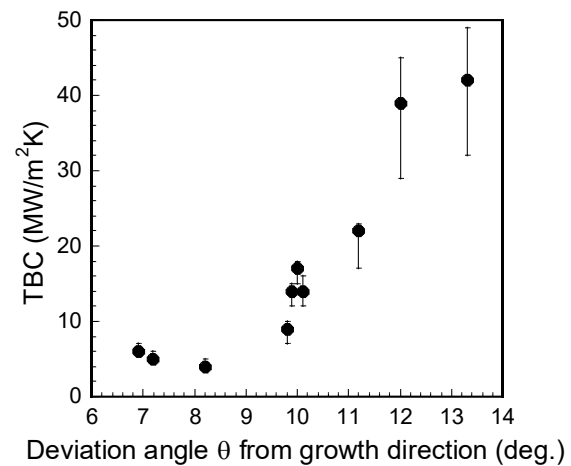


Fig. 1 The relation between TBC and θ .

【実験結果と考察】今回の実験で、TBCに対する α と β の影響はないことが分かった。一方で、Fig. 1に示したように、 θ については大きいほどTBCは大きかった。その理由は、粒界の不純物偏析とそれに伴うキャリア濃度の変化であると考えられた。Siではキャリア濃度が高いと熱伝導率が小さくなる^[2]。また、フォトルミネッセンスイメージング測定から θ が大きいほど界面再結合速度が大きい結果が得られている^[1]。したがって、キャリア濃度が低下することで熱伝導率が大きくなりTBCも大きくなったと考えられる。一方で、小さい θ ではキャリア濃度が比較的高いため熱伝導率が小さく、TBCも小さくなったと考えられる。

本研究はJSPS 科研費 JP20H05649 と JST CREST JPMJCR17J1 の支援を受けた。

[1] Y. Fukuda *et al.*, J. App. Phys. **132**, 025102 (2022).

[2] B. Liao *et al.*, Phys. Rev. Lett. **114**, 115901 (2015).

CeO₂ 電気化学熱トランジスタ: 熱伝導率の CeO₂ 膜厚依存性



CeO₂-based Electrochemical Thermal Transistors:

CeO₂ Thickness Dependence of Thermal Conductivity

北大電子研¹, 北大院情報² °ジョンアロン¹, (D3)卞志平², (M2)吉村充生²,

(D1)コンヒョンジュン², 曲勇作¹, 太田裕道¹

RIES-Hokkaido U.¹, IST-Hokkaido U.², °Ahrong Jeong¹, Zhiping Bian², Mitsuki Yoshimura²,

Hyeonjun Kong², Yusaku Magari¹, and Hiromichi Ohta¹

E-mail: ahrong.jeong@es.hokudai.ac.jp

背景 電気化学酸化・還元により、活性層酸化物の熱伝導率(κ)を高熱伝導率(On)/低熱伝導率(Off)に可逆的に切替える電気化学熱トランジスタが注目されている。我々は、SrCoO_x ($2 \leq x \leq 3$)^[1-3]、LaNiO_{3- δ} ^[4]、CeO_{2- δ} 薄膜^[5]を活性層として、固体電解質 YSZ 単結晶基板上にエピタキシャル成長させ、Pt 薄膜で挟み込んだ二端子構造の電気化学熱トランジスタを実現した。これらの酸化物薄膜の中で、CeO₂ 薄膜は最も優れた熱トランジスタ特性を示す; 熱伝導率制御幅 9.5 W/mK (CeO₂: 12 W/mK、CeO_{2- δ} : 2.5 W/mK)、On/Off 比 4.8。しかし、その優れた熱トランジスタ特性の起源は明らかではない。本研究では、熱トランジスタ特性に及ぼす CeO₂ 薄膜の膜厚の影響を調べた結果、On 状態(CeO₂)における CeO₂ 薄膜の熱伝導率が膜厚の増加とともに増大し、バルク値(~14 W/mK)^[6]に近づくことが分かったので報告する。

実験 (001) YSZ 単結晶基板上に、PLD 法により膜厚 22、45、100、250 nm の CeO₂ 薄膜をエピタキシャル成長させた後、CeO₂ 薄膜表面と YSZ 基板裏面に Pt 薄膜を DC スパッタリング成膜し、熱トランジスタを作製した。その後、既報^[1-5]に従って電気化学酸化・還元を行い、TDTR 法により熱伝導率を計測した。

結果 作製した電気化学熱トランジスタを電気化学酸化・還元したところ、CeO₂ 膜厚に依らず CeO₂ 単相 \leftrightarrow CeO₂/CeO_{2- δ} 二相共存の結晶相変化が起こることが分かった。**図 1** に作製した熱トランジスタの On 状態と Off 状態における熱伝導率の CeO₂ 膜厚依存性を示す。Off 状態における熱伝導率は膜厚に依らずほぼ 2.0 W/mK 一定であったのに対し、On 状態における熱伝導率は CeO₂ 膜厚の増加とともに増大し、バルク値(~14 W/mK)に近づくことが分かった。

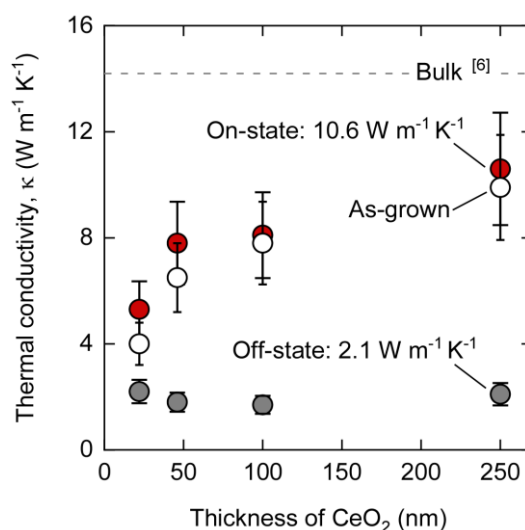


FIG. 1 | CeO₂-thickness dependence of thermal conductivity after oxidation (on-state) and reduction (off-state).

文献 [1] Q. Yang *et al.*, *Adv. Funct. Mater.* **33**, 2214939 (2023), [2] Z. Bian *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 23512 (2023), [3] M. Yoshimura *et al.*, *ACS Appl. Electron. Mater.* **5**, 4233 (2023), [4] Z. Bian *et al.*, *Adv. Sci.* accepted for publication; Preprint at <<https://arxiv.org/abs/2404.08307>> (2024), [5] A. Jeong *et al.*, under review; Preprint at <<https://arxiv.org/abs/2404.19385>> (2024), [6] K. Suzuki *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.* **102**, 1994 (2019).

CeO₂ 電気化学熱トランジスタに及ぼすキャップ層の影響

Effect of Capping Layers on CeO₂-based Electrochemical Thermal Transistors

北大院情報¹, 東大総研², 北大電子研³ ○(D1) コンヒョンジュン¹, タムジェイソン²,
(D3) 卞 志平¹, (M2) 吉村充生¹, ジョンアロン³, フウビン², 幾原雄一², 曲 勇作³, 太田裕道³
¹IST-Hokkaido U., ²U. Tokyo, ³RIES-Hokkaido U., ○Hyeonjun Kong¹, Jason Tam², Zhiping Bian¹, Mitsuki
Yoshimura¹, Ahnong Jeong³, Bin Feng², Yuichi Ikuhara², Yusaku Magari³, and Hiromichi Ohta³
E-mail: hjkong1113@gmail.com

An electrochemical thermal transistor is a device capable of reversibly switching the thermal conductivity (κ) of the active oxide layer high and low, through electrochemical redox reactions. Our research group demonstrated thermal transistor characteristics of several active oxide materials for thermal transistors such as SrCoO_x ($2 \leq x \leq 3$) [1-3], LaNiO_{3- δ} [4], and CeO_{2- δ} [5]. Among many active oxide materials, we focus on CeO_{2- δ} , because the CeO₂-based thermal transistors show a wide κ switching width of 9.5 W/mK and an on-to-off κ ratio of 4.8. An interesting feature of our CeO₂-based thermal transistors is that reduced off-state is composed of partially reduced CeO_{2- δ} and fully oxidized CeO₂ domains. Reduced CeO_{2- δ} would exhibit rather large oxide ion (O²⁻) conductivity like rare-earth element (Gd, Sm)-doped CeO₂. If oxygen gas is supplied externally, O²⁻-conduction occurs instead of electrochemical reduction. Here, we used a capping layer to suppress the external oxygen supply to the CeO₂-based thermal transistors. To clarify the capability of the capping layer, we used SrCoO_{2.5} as the capping layer, because SrCoO_{2.5} grows heteroepitaxially on CeO₂. Further, we used 10% Gd-doped CeO₂ (GDC) as the active layer since it shows large O²⁻ conductivity. The GDC layer (100 nm) was completely reduced after applying an electron concentration of $2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ when capped using the SrCoO_{2.5} layer (10 nm) (**Fig. 1a**). Thus, the electrochemical reduction obeys Faraday's laws of electrolysis. On the contrary, it did not occur without the capping layer (**Fig. 1b**). From these results, we concluded that the use of SrCoO_{2.5} layer (10 nm) was useful to suppress the external oxygen supply to the CeO₂-based thermal transistors.

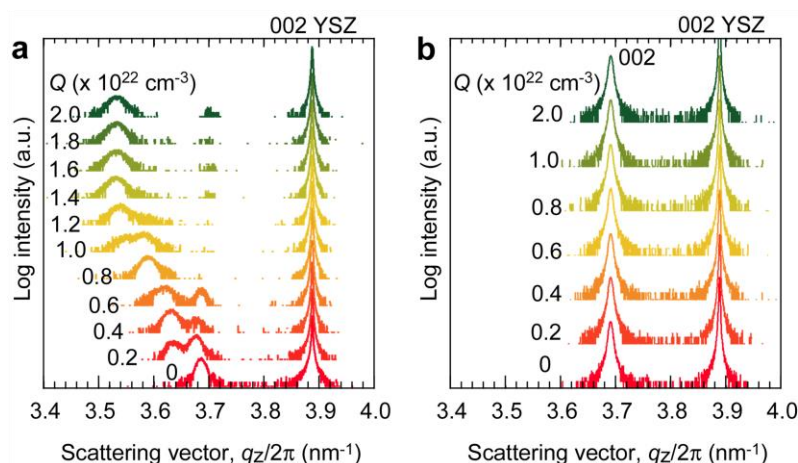


Fig. 1 | Out-of-plane XRD patterns of the GDC-based thermal transistors after the electrochemical reduction at 280 °C. (a) with 10-nm-thick SrCoO_{2.5} capping layer, (b) without capping layer.

References [1] Q. Yang *et al.*, *Adv. Funct. Mater.* **33**, 2214939 (2023), [2] Z. Bian *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 23512 (2023), [3] M. Yoshimura *et al.*, *ACS Appl. Electron. Mater.* **5**, 4233 (2023), [4] Z. Bian *et al.*, *Adv. Sci.* in press (2024); Preprint at <<https://arxiv.org/abs/2404.08307>> (2024)., [5] A. Jeong *et al.*, under review; Preprint at <<https://arxiv.org/abs/2404.19385>> (2024).

希土類酸化物を活性層とする電気化学熱トランジスタ

Electrochemical Thermal Transistors with Lanthanide Oxides as Active Layers

北大院情報¹, 東大総研³, 北大電子研² [○](M2)吉村充生¹, タムジェイソン², (D3)卞 志平¹,
(D1)コンヒョンジュン¹, ジョンアロン³, フウビン², 幾原雄一², 曲 勇作³, 太田裕道³
¹IST-Hokkaido U., ²U. Tokyo, ³RIES-Hokkaido U., [○]Mitsuki Yoshimura¹, Jason Tam², Zhiping Bian¹,
Hyeonjun Kong¹, Ahrong Jeong³, Bin Feng², Yuichi Ikuhara², Yusaku Magari³ and Hiromichi Ohta³
E-mail: yoshimura.mitsuki.a9@elms.hokudai.ac.jp

背景 電気化学酸化・還元により、活性層酸化物の熱伝導率 (κ) を高熱伝導率 (On) / 低熱伝導率 (Off) に可逆的に切替える電気化学熱トランジスタが注目されている。我々の研究グループでは、 SrCoO_x ($2 \leq x \leq 3$)^[1-3]、 $\text{LaNiO}_{3-\delta}$ ^[4]、 $\text{CeO}_{2-\delta}$ ^[5]を活性層とし、固体電解質 YSZ と組み合わせた全固体電気化学熱トランジスタを報告した。数ある活性層酸化物の中でも、 CeO_2 薄膜は On/Off 比 = 4.8、 κ 変化幅 = $9.5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ の良好な熱トランジスタ特性を示すが^[5]、その起源は不明である。本研究では、 CeO_2 と同じ結晶構造をとる希土類酸化物 LnO_x ($\text{Ln} = \text{Ce, Pr, Tb}$)を活性層とする熱トランジスタを作製し、電気化学酸化・還元による結晶構造変化と熱伝導率の関係を詳細に調べた。

実験 PLD 法により膜厚 50 nm の LnO_x ($\text{Ln} = \text{Ce, Pr, Tb}$) 薄膜を(001) YSZ 基板上にエピタキシャル成長させた後、膜面・基板裏面に Pt 薄膜を DC スパッタして熱トランジスタとし、空气中、280℃ で通電して還元および酸化したときの結晶相変化と κ 変化を、それぞれ X 線回折 (XRD) および時間領域サーモリフレクタンス法 (TDTR) により追跡した。

結果 Ex-situ out-of-plane XRD パターンの変化より、酸化還元において通電密度 $Q = 2.5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ の通電により結晶相変化が起こることが分かった。完全に酸化した状態 (On 状態) と還元した状態 (Off 状態) における κ と、On/Off 比を表 I にまとめて示す。 CeO_x は、以前の報告と同様に CeO_2 単相 \leftrightarrow $\text{CeO}_2/\text{CeO}_{2-\delta}$ 相共存の結晶相変化が確認され、 PrO_x 、 TbO_x においては LnO_2 単相 \leftrightarrow Ln_2O_3 単相の変化が起こった。酸化還元に伴う κ の計測の結果、 CeO_x では κ が単調に増減したのに対し、 PrO_x および TbO_x の κ 変化は単調ではなく、酸化状態と還元状態の間に最低の κ をとなる状態が存在することが判明した。 PrO_x および TbO_x 最低 κ 状態における out-of-plane XRD パターンからは複数の結晶相の混在が示唆されており、結晶相共存による粒界が最低 κ の要因であると考えられる。一方 On 状態の κ は、 $\text{CeO}_2 > \text{PrO}_2 > \text{TbO}_2$ であった。以上の結果から、 CeO_2 薄膜を活性層とした熱トランジスタの性能の高さは、Off 状態で二相共存状態であることと On 状態の高 κ によることが明らかになった。

Table I | Thermal conductivities and On/Off ratios of the LnO_x ($\text{Ln} = \text{Ce, Pr, Tb}$)-based thermal transistors measured at room temperature.

	CeO_x	PrO_x	TbO_x
On state	$7.8 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$	$5.4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$	$2.3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Off state	$1.8 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$	$1.6 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$	$1.7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
On/Off ratio	4.3	3.9	1.4

文献 [1] Q. Yang, M.Y. *et al.*, *Adv. Funct. Mater.* **33**, 2214939 (2023), [2] M.Y. *et al.*, *ACS Appl. Electron. Mater.* **5**, 4233 (2023), [3] Z. Bian, M.Y. *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 23512 (2024), [4] Z. Bian, M.Y. *et al.*, *Adv. Sci.* accepted for publication; Preprint at <<https://arxiv.org/abs/2404.08307>> (2024). [5] A. Jeong, M.Y. *et al.*, under review; Preprint at <<https://arxiv.org/abs/2404.19385>> (2024).

強い2次元水素結合ネットワークを有するホウ酸単結晶の熱輸送特性

Thermal transport properties of a boric acid single crystal

with a strong two-dimensional hydrogen bonding network

東京工業大学¹, 産業技術総合研究所², 東北大学³ ○竹原 陵介¹, 久保 夏葵¹, 劉 芽久哉²,

森川 淳子¹, 芥川 智行³, 福島 孝典¹

Tokyo Tech¹, AIST², Tohoku Univ.³ ○Ryosuke Takehara¹, Natsuki Kubo¹, Meguya Ryu²,

Junko Morikawa¹, Tomoyuki Akutagawa³, Takanori Fukushima¹

E-mail: takehara.r.ab@m.titech.ac.jp

我々は、分子間力によって形成される物質が高い熱伝導度を持つためには（１）強い分子間力とその様式、（２）構成要素が軽元素、（３）高密度な分子集合形態が重要であると考え、これらの条件を満たすホウ酸に着目した。ホウ酸は分子間水素結合のネットワークにより2次元シート構造を形成し、その2次元シートが積層した結晶構造をとる（Figure 1）。シート面内方向の熱拡散率は室温において $1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度の値を示し、分子間力により形成される物質としては高い熱拡散率を持つことを前々回の学術講演会で報告した。また面内方向の熱拡散率は、ファンデルワールス力のみが働く積層方向に比べて約 7 倍の顕著な異方性を示し、水素結合ネットワークが優れた熱輸送パスを提供することを明らかにした。本研究ではさらに、ホウ酸に対するフォノン分散関係の計算結果をもとに、水素結合ネットワーク構造が示す高い熱伝導特性の起源について調べた。

ホウ酸単結晶のフォノン分散関係（Figure 2）から見積もられた面内、積層方向のフォノン群速度はそれぞれ 3870 m s^{-1} と 1840 m s^{-1} であり、約 2 倍の差がある。しかし、熱拡散率はフォノン群速度と平均自由行程の積で決まることから、これだけでは熱拡散率の約 7 倍の異方性を説明することはできない。そこでそれぞれの方向に対して室温における平均自由行程を求めたところ、面内方向には 7.40 \AA 、面外方向には 2.32 \AA の値が得られ、面内方向は積層方向に比べて、平均自由行程の熱拡散率へ寄与が約 3 倍あることが示された。一方、ホウ酸単結晶の格子定数の温度依存性から非調和効果の大きさを表すグリュナイゼンパラメーターを求めると、その値は積層方向に比べて面内方向の方が大きく、フォノンの散乱は面内方向の方が起こりやすいことが明らかになった。以上より、ホウ酸単結晶において、ファンデルワールス力のみが働く方向よりも水素結合方向でよりフォノンの散乱が起こりやすい一方、水素結合方向は強い相互作用によりフォノン群速度が高く、平均自由行程が長いため、熱拡散率が高いと解釈できる。本発表ではさらに、ホウ酸単結晶に対する圧力下の熱拡散率の測定結果をもとに、面内および積層方向の熱拡散率に対する圧力効果についても議論をする予定である。

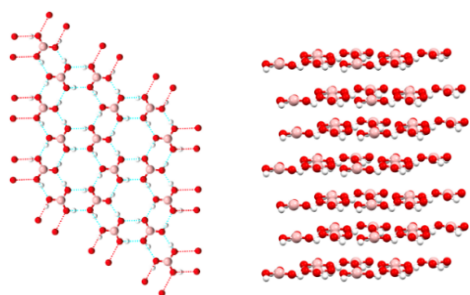


Figure 1. Schematic illustration of the crystal structure of boric acid, highlighting the 2D sheet (left) and stacked direction (right).

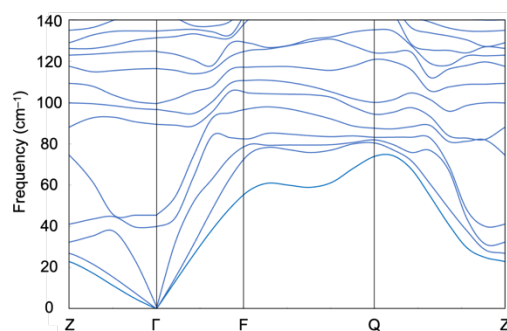


Figure 2. Phonon dispersion of a single crystalline boric acid.

遷移金属ダイカルコゲナイドモアレ超格子の熱伝導

Thermal conduction in transition metal dichalcogenide moiré superlattices

東大工¹, 東大生研² ○許 斌¹, 安 盟¹, 増淵 寛², 李 遠哲¹, 町田 友樹², 塩見 淳一郎¹

Univ. Tokyo¹, IIS. Univ. Tokyo², °Bin Xu¹, Meng An¹, Satoru Masubuchi², Yuanzhe Li¹, Tomoki

Machida², Junichiro Shiomi¹, E-mail: shiomi@photon.t.u-tokyo.ac.jp

二次元 (2D) モアレ超格子は、その優れた特性により、近年注目を集めている。熱伝導特性においては、積層やツイスト角の構成によって調整することができることが特徴的である。Kim らの実験では、ランダムに積層された MoS_2 多層モアレ超格子において、面直方向の熱伝導率の大幅な低下により、最大 300 の熱伝導率異方性(面内と面直方向の比) が実証された^[1]。この研究は二次元モアレ超格子において熱伝導率がツイスト角に大きく影響することを示したが、層間熱伝導とツイスト角の具体的な相関については未解明である。面直方向の熱伝導

率のツイスト角依存性を分子動力学シミュレーションによって計算した先行研究では、熱伝導はツイスト角が 0° から増加とともに減少し、 10° あたりから依存性が弱くなり、 30° を中心におおよそ一定値をとり、 50° 以降は再度増加することを明らかにした^[2,3]。これを受けて、実験的な実証が必要であるが、高感度の測定方法が必要であるため、その実施例は限られている^[4]。

本研究では、高感度の時間領域サーモリフレクタンس (TDTR) 法を用いて、ツイスト二層 WS_2 と MoS_2 の層間の熱コンダクタンスを測定した。その結果、先行の理論研究^[2]と同様に、ツイスト角が 0° から 10° まで (あるいは 60° から 50° まで) 増加するにつれて熱コンダクタンスが減少する傾向を示し、 $10\sim 50^\circ$ の間で最小値をとることが明らかになった (図 1)。さらに、ラマン分光法を用いて、ツイストに起因するひずみと格子の再構成を評価したところ、熱伝導率と強い相関を有することがわかった。このように、ツイスト由来のひずみと熱コンダクタンスの関係を明らかにすることは、モアレ超格子の熱伝導のメカニズム解明に寄与するだけでなく、他のモアレ超格子系における熱輸送を研究する参考になり、モアレ構造の熱伝導制御に重要な実験指標を提供する。

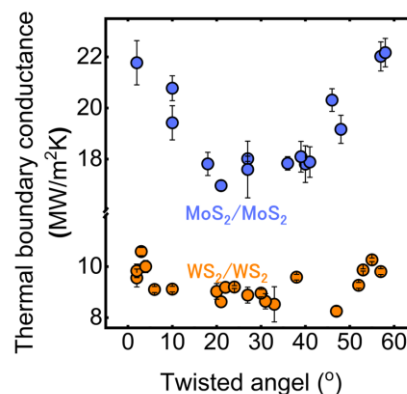


図1 ツイスト二層 MoS_2 と WS_2 モアレ超格子の層間熱コンダクタンス

[1] S. Kim et al. Nature, 597, 660 (2021).

[2] W. Jiang et al. Int. J. Heat Mass Transf., 217, 124662 (2023).

[3] F. Eriksson et al. ACS Nano., 17, 25565 (2023).

[4] L. Zhang et al. Nano letters, 23, 7790 (2023).

Optimizing cryogenic graphene: how Golomb ruler-designed isotope interfaces suppress thermal transport

Univ. of Tokyo¹, SCUT², Bohai Univ.³, LIMMS⁴

[○]X. Wu^{1,2}, Z. Fan³, S. Volz^{1,4}, Q. Han², M. Nomura¹

E-mail: xinwu@iis.u-tokyo.ac.jp

The Golomb ruler, a mathematic concept, is a set of marks at integer positions along a ruler such that no two pairs of marks are the same distance apart [1-2]. Applying this concept to physics may shed light on some entirely new phenomena, especially in some optimization problems.

Driven by strong impetus, the need for thermal management at cryogenic temperatures is rapidly emerging in several fields including quantum computing, quantum communication, life sciences, etc. [3] In this work, inspired by the Golomb ruler sequence, graphene nanoribbons containing linear isotope interfaces were constructed as depicted in Fig. 1(a), and efficient suppression of phonon thermal transport was achieved at a cryogenic temperature of 20 K. As shown in Fig. 1(b), compared with other sequences such as Equidistant and Fibonacci, the extremely strong disordering of the Golomb ruler sequence makes the isotope interfaces have a stronger scattering and confinement effect on the phonon transport. The isotope interfaces arranged according to the Golomb ruler sequence greatly impede the phonon transport over a wide spectral range. Through phonon analysis of a pair of systems, based on a Golomb ruler and an equidistant structure, the results indicated that the difference in the phonon mean free path (MFP) of low-frequency out-of-plane phonons is a crucial factor for the difference in thermal conductivity. This effect is notably pronounced at cryogenic temperatures where phonon energies are lower, otherwise, higher phonon energies render phonon transport less sensitive to differences in isotopic interface positions. Furthermore, the isotope interface density and doping ratio have no significant impact on thermal conductivity at cryogenic temperatures.

This study provides valuable insights into cryogenic thermal management and is expected to inspire extensive theoretical research and practical micro-nano applications.

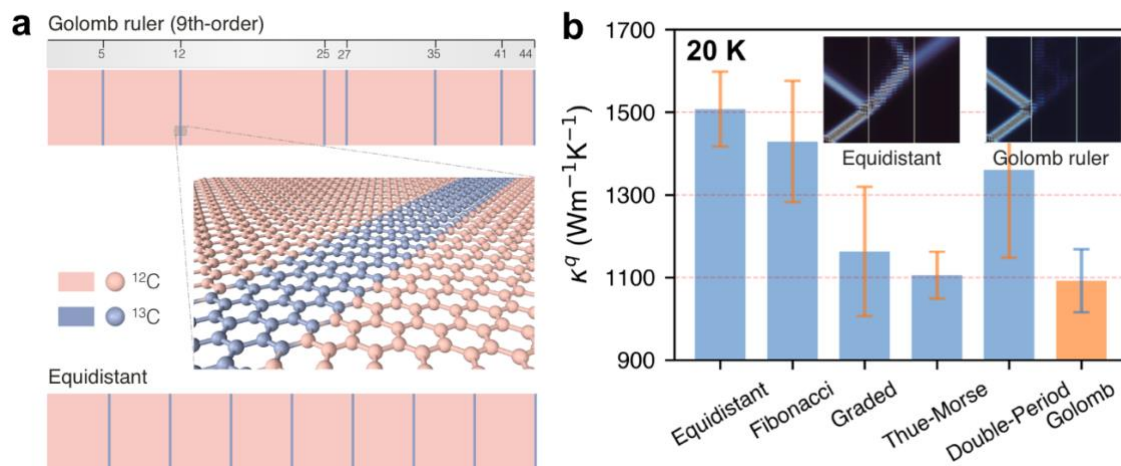


Fig. 1 (a) The illustration of graphene nanoribbon with the Golomb array isotope interfaces. (b) Quantum-corrected thermal conductivity of the graphene with different sequences of isotope interfaces at 20 K. The subplot is the wave-packet simulation results of Equidistant and Golomb ruler-based structures.

Acknowledgements This work was supported by the JSPS Grants-in-Aid for Scientific Research (Grant Nos. 21H04635 and 20H05649). X. W. thanks the support from JSPS Postdoctoral Fellowship for Research in Japan (No. P24058). We thank the useful discussion with Dr. Y. Wu and Dr. X. Huang.

References [1] Sidon, S. Math. Ann. **106** 536-539 (1932). [2] Badcock, Wallace C. Bell Syst. Tech. J. **31** 63-73 (1953). [3] F. Arute et al. Nature **574**(7779) 505-510 (2019)

一次元熱拡散シミュレーションを用いた CNT 集合体の熱伝導率測定

Thermal conductivity measurement of CNT assemblies using 1D thermal diffusion simulation

静岡大学¹, 近畿大学² ○(M2)黒野 陽斗¹, 杉目 恒志², 濱崎 拓¹, 中野 貴之¹, 池田 浩也¹, 井上 翼¹

Shizuoka Univ.¹, Kindai Univ.², °Haruto Kurono¹, Hisashi Sugime², Hiromu Hamasaki¹, Takayuki Nakano¹, Hiroya Ikeda¹, Yoku inoue¹

E-mail: kurono@cnt.eng.shizuoka.ac.jp

【緒言】 近年、電子デバイスや自動車などの分野で熱を効率的に処理するサーマルマネジメントが重要となっている。そこで高い熱伝導率をもつ CNT(Carbon nanotube)が注目されている。ただし、ナノ材料である CNT の熱伝導率を正確に評価するのは困難である。そこで本研究では乾式紡績現象を利用した撚糸及び超長尺 CNT などの構造体を用いた CNT のマクロスケールでの熱伝導特性の研究を行った。

【実験】 熱化学気相成長法(Hot-wall CVD)により、Si 基板に紡績性を発現する垂直配向 CNT フォレストを合成した。フォレスト側面から CNT ウェブを回転させながら引き出すことにより撚糸を作製した。一方、約 11cm の超長尺連続結晶 CNT をフェロセンやアルミニウムイソプロポキシドを添加した Cold-gas CVD により合成した。

熱伝導率測定のため、電子線を熱源として照射した CNT 試料の温度減衰を過渡応答一次元熱拡散方程式で解析することで、熱拡散率 α を見積もった(Fig.1)。CNT の比熱 C は示差走査熱量計(DSC)を用いて測定した。CNT の重量密度 ρ は層数と直径から算出した。熱伝導率 κ を $\kappa = \alpha \rho C$ として導出した。熱伝導特性における結晶性の影響を調べるため、急速誘導加熱により CNT を高結晶化した。CNT の結晶性は Raman 分光器にて測定し、 sp^2 面内振動モードの G ピーク(1575cm^{-1})と欠陥起因の D ピーク(1350cm^{-1})の強度比(G/D 比)にて評価した。

【結果】 Fig.2 に高結晶化処理を行った CNT 撚糸と超長尺 CNT の熱伝導率を示す。超長尺 CNT の熱伝導率は結晶性が上がるにつれ顕著に上昇し、約 3.5 倍となった。結晶欠陥の修復によりフォノン散乱が減少し、熱伝導率が著しく向上したと考えられる。一方で、撚糸の熱伝導率の向上は超長尺 CNT ほど顕著ではない。これは CNT/CNT 界面におけるフォノン散乱の影響を受け、連続結晶体ほど上昇しないと考えられる。

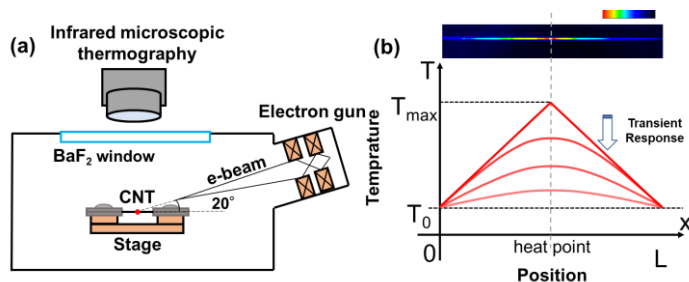


Fig.1:(a) Schematic diagram of thermal diffusivity measurement system and (b) transient thermal response.

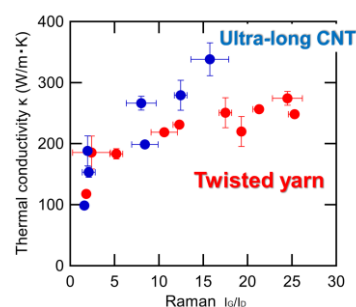


Fig.2 Comparison of thermal conductivity between twisted yarn and ultra-long CNT.

過渡熱応答測定による金属-CNT 界面熱抵抗の考察

Study of thermal resistance at the metal-CNT interface by transient thermal response measurements

静岡大学 ○(M2) 林孝祐, 中野貴之, 井上翼

Shizuoka Univ. °Kosuke Hayashi, Takayuki Nakano, , Yoku Inoue

E-mail: hayashi.kosuke@cnt.eng.shizuoka.ac.jp

【緒言】 CNT(Carbon nanotube)は高い熱伝導率から熱界面材料(Thermal interface material: TIM)としての応用が期待されている。ただし、フォノン伝導が支配的な CNT と電子伝導が主となる金属間で効果的な熱輸送となることが重要である。そこで本研究では CNT/金属界面の熱伝導に着目し、過渡熱応答測定により CNT 先端部と冷却源の接合状態を変化させた試料について調査を行った。

【実験】 本研究では、熱化学気相成長法(CVD)により、Al 及び Si 基板に垂直配向 CNT フォレストを合成した。CNT のフォレスト長さが約 300 μm 、密度が約 80mg/cm³、Raman 散乱 GD 比が約 0.7 程度の高密度 CNT フォレストを合成した。CNT 先端部にスパッタリングにより Al を堆積させて接触熱抵抗の変化を調べた。CNT フォレストの厚み方向の熱抵抗を調べるため、過渡熱応答測定装置を用いて熱構造関数を測定した。得られた過渡冷却曲線を数値演算して構造関数に変換し、ステップ構造を要素分解することで試料の熱抵抗を見積もった。

【結果】 Fig.1 に Al を製膜した CNT フォレスト先端部の SEM 像を示す。CNT 先端部を覆うように Al が堆積している。Si 基板上に合成した CNT フォレストの先端部が冷却器に接する配置にて過渡熱応答を測定した結果を Fig.2 に示す。CNT 先端部の Al 形成有無による熱構造関数を比較した。0.5cm²K/W 程度まで熱源構造が見られ、その後傾斜の小さい CNT 由来の構造が現れ、最後に熱容量の大きい冷却源の構造が現れる。基板上へ合成した CNT フォレスト由来の熱抵抗は 3.1cm²K/W であった。先端部に Al を堆積させた CNT フォレストでは、CNT 由来の熱抵抗が 2.5cm²K/W まで減少した。この結果は CNT 先端部の金属と CNT 間で効果的な熱輸送となっていることを示唆している。

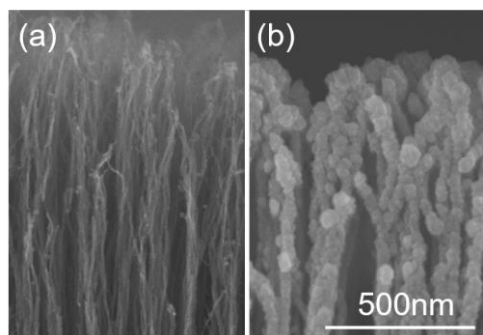


Fig.1: SEM images of the tip of CNTs deposited (a) without and (b) with Al

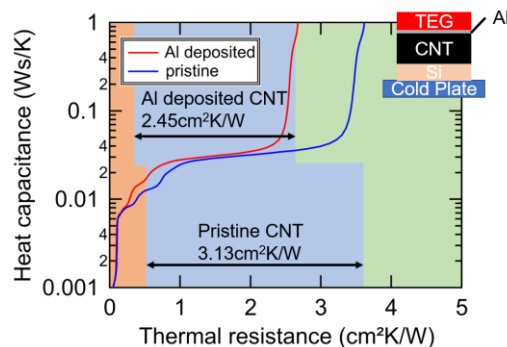


Fig2: Comparison of thermal structure functions of Al deposited and pristine CNT forests

超伝導デバイスを用いた SiO₂/Si 界面を持つ SiO₂ 層のフォノン減衰長の測定

Investigation of the Phonon Decay Length in a SiO₂ Layer Having a SiO₂/Si Interface

Using Superconducting Devices

電通大情報理工¹ ○(M2)飯塚 竜也¹, Jutarat Tanarom¹, 水柿 義直¹, 島田 宏¹

UEC¹, °Tatsuya Iizuka¹, Jutarat Tanarom¹, Yoshinao Mizukgaki¹, Hiroshi Shimada¹

E-mail: i2333006@edu.cc.uec.ac.jp

1. 背景・目的

素子の微細化の増進により高密度なナノデバイスの作製が可能となるに伴い、発生する熱の影響によるデバイスの性能低下が問題となっている。[1] また、超伝導量子ビットにおいてもフォノン吸収により超伝導電極に発生する Bogoliubov 準粒子（以降、準粒子）がコヒーレンスの低下を引き起こすことが知られている。[2] そのため、ナノスケールでの熱/フォノンの制御は実現すべき課題である。以前の我々の研究では SiO₂/Si 基板上にフォノンの発生器及び検出器として超伝導デバイスを作製し、フォノンの伝播経路を調べ、検出されたフォノンのほとんどは SiO₂ 層を伝播してきたものだという結果を得た。本研究では、SiO₂/Si 界面におけるフォノンの透過率の情報を得ることを目的に、SiO₂/Si 基板上の超伝導デバイスによるフォノンの発生・検出実験を行い、SiO₂ 層におけるフォノン減衰長の測定を行った。

2. 実験原理・方法

Al/AIO_x/Al 接合からなる超伝導量子干渉計（SQUID）と単一クーパ対トランジスタ（SCPT）を、厚さ 525 μm の SiO₂/Si 基板（SiO₂ 厚約 1 μm）上に作製した（Fig. 1）。SQUID は閾電圧以上で準粒子が接合をトンネルし再結合することで差分のエネルギー（約 170 μeV）を持つフォノン（約 90 GHz）を発生させる。SCPT はフォノンが到達・吸収されると超伝導電流が減少する特性をもち、高感度のフォノン検出器として利用が可能である。[3]

SiO₂/Si 界面のフォノン伝播への影響を調べるためにフォノン発生器・検出器間距離 d を 5, 10, 15, 20 μm と変えて試料を作製した。SQUID 発生器から SCPT 検出器へのフォノンの到達度を調べるために、発生器の準粒子電流に対する検出器の超伝導電流の依存性を、温度 $T \cong 70$ mK 下で測定した。発生器電流と検出器応答を関連付けるパラメータ (f_{arr}) の距離依存性からフォノンの減衰長 λ を求めた。

3. 結果・考察

f_{arr} と d の積は d に対しておよそ指数関数的に減少した。（Fig. 2）準粒子の拡散距離が 300 μm 程度[3] と長いため、SQUID のリード線部分でもフォノンが発生することを考慮した近似曲線より $\lambda = 6.2$ μm を得た。（Fig. 2 実線）

100 mK 以下では、SiO₂ 中のフォノンの平均自由行程は 100 μm 以上となり[4]、弾道的な伝導を仮定できる。したがって、境界散乱のみを考慮し、 λ から界面の透過率の情報を得られる。

[1] Arden L. Moore et al., Mater. Today **17**, 4 (2014).

[2] A. Bargerbos et al., Phys. Rev. Appl. **19**, 024014 (2023).

[3] Jutarat Tanarom et al., Appl. Phys. Express **15**, 064001 (2022).

[4] P. D. Vu et al., J. Low Temp. Phys. **113**, pp. 123-139 (1998).

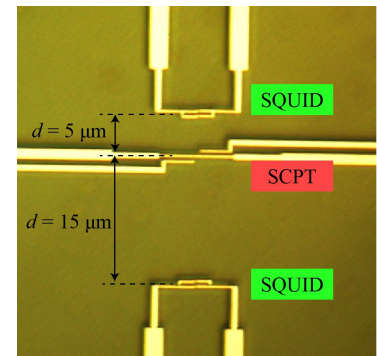


Fig. 1 The optical microscope photograph of the devices. Two samples ($d = 5 \mu\text{m}$ and $15 \mu\text{m}$) are represented.

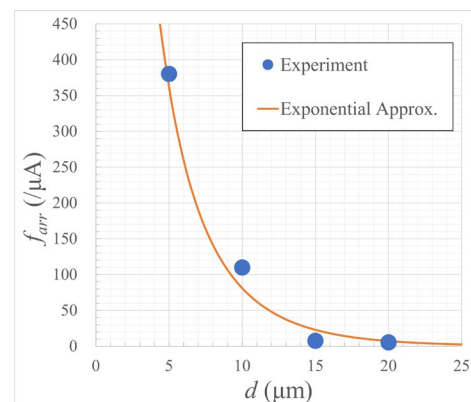


Fig. 2 Dependence of f_{arr} on the distance between devices d . Circles represent the experiment points. The solid line is the approximate curve estimated using a phonon decay length $\lambda = 6.2 \mu\text{m}$.

アモルファス酸化物界面の遷移領域における フォノンブリッジング：分子動力学による解析 Interfacial Phonon Bridging Effect at the Transition Layer of Amorphous Oxides Hetero-interfaces: A Molecular Dynamics Study

早大理工 °西村 祐亮 渡辺 留久人 渡邊 孝信

Waseda Univ., °Y. Nishimura, R. Watanabe, and T. Watanabe

E-mail: yusukeskelton@toki.waseda.jp

【はじめに】LSIの微細化に伴い、メタル配線やトランジスタにおける電流密度が上昇し、ジュール発熱による温度上昇がますます深刻化する。効率的な排熱のためには、構成材料自身の熱抵抗を抑えると同時に、構成材料間の界面における熱抵抗を抑制することが重要となる[1]。絶縁物同士の界面熱抵抗は格子振動の不整合に起因するため、両材料のフォノン状態密度分布と重なる分布を持つ別の材料を挟む（フォノンブリッジング）ことで、界面熱抵抗を低減できることが報告されている[2,3]。前回[4]、界面近傍に組成遷移を含むアモルファス酸化物界面構造に対する非平衡分子動力学シミュレーションの結果を報告し、遷移層が厚ければ厚いほど界面熱抵抗が低下する傾向があることを示した。今回、アモルファス酸化物界面の組成遷移層のフォノン状態密度を解析し、組成遷移層が界面熱抵抗に与える影響をフォノンブリッジングで説明できるか検討した。

【計算手法】Fig.1は組成遷移層の長さが16ÅのSrO/SiO₂界面モデルである。Fig.2に示すように、界面からSiO₂側までの遷移層を含む幅10Åの領域をLayer 1、SrO側の幅10Åの領域をLayer 2とする。また、そのさらに外側のSiO₂側10Åの領域をLayer SiO₂、SrO側10Åの領域をLayer SrOと呼ぶことにする。MD計算で得られた軌跡データから、各Layer内の原子の速度の自己相関関数を求め、それをフーリエ変換してLayer毎のフォノン状態密度を求めた[5]。Fig.2には、非平衡分子動力学シミュレーションを行った際の温度分布プロファイルを重ねて示している。この温度プロファイルとフォノン状態密度を比較し、熱抵抗の起源を調査した。

【結果】Fig.3に得られた組成遷移層の長さが16ÅのSrO/SiO₂界面モデルの各Layerのフォノン状態密度分布を示す。Layer 1とLayer 2ではLayer SiO₂とLayer SrOの中間的なスペクトルが見られた。特にLayer 1の状態密度はLayer SiO₂と似ており、Layer SiO₂-Layer 1間の温度差も他のLayer間の温度差に比べて小さい。これはLayer 1のシリケート層が特にフォノンブリッジング層として機能していると考えられる。

【謝辞】本研究は科学研究費 基盤研究 (B) (23K22800)の支援を受けて行われた

【参考文献】 [1] E. T. Swartz and R. O. Pohl, Rev. Mod. Phys. 61, 605 (1989). [2] B. Xu, S. Hu, S.-W. Hung, C. Shao, H. Chandra, F.-R. Chen, T. Kodama, and J. Shiomi, Sci. Adv. 7, eabf8197 (2021). [3] W. Y. Woon, S. Vaziri, C. C. Shih, I. Datye, M. Malakoutian, J. Hsu, K. F. Yang, J. R. Huang, T. M. Shen, S. Chowdhury, X. Y. Bao, and S. S. Liao, in Int. Electron Devices Meet., 1-4 (2023). [4] R. Watanabe, Y. Nishimura and T. Watanabe, JSAP EXPO spring 2024 (2024). [5] L. T. Kong and J. F. Li and Q. W. Shi and H. J. Huang and K. Zhao, EPL. 97, 56004 (2012).

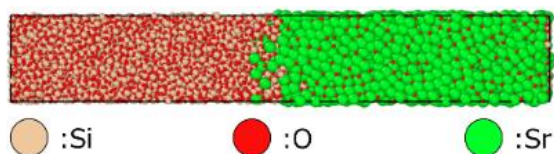


Fig. 1 Interfacial Model of SiO₂/SrO

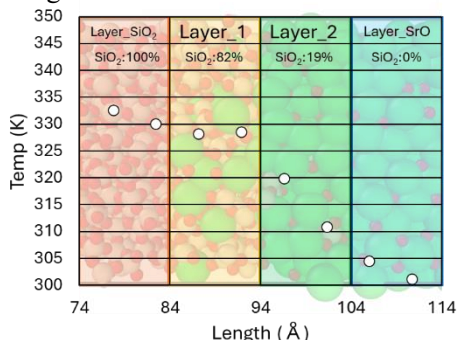


Fig. 2 Temperature Profile of Interfacial Region

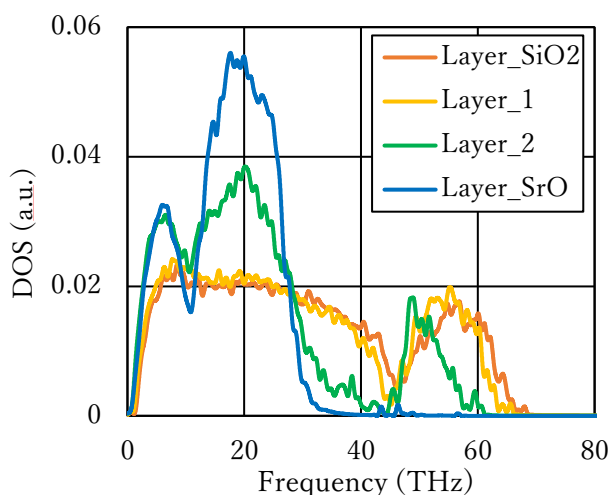


Fig. 3 Vibrational DOS of Interfacial Region

熱ポンピング現象を用いた熱流スイッチング素子の高性能化

Development of high-efficiency thermal switching devices with heat pumping effect

豊田工業大学, [○](M2) 樋田 怜史, 平田 圭佑, 松波 雅治, 竹内 恒博

Toyota Tech. Inst., [○]Reiji Toida, Keisuke Hirata, Masaharu Matsunami, and Tsunehiro Takeuchi

E-mail: sd23429@toyota-ti.ac.jp

緒言

$\text{Ag}_2\text{S}_x\text{Se}_{1-x}$ 材料は $0.4 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 程度の極めて低い格子熱伝導度を有し、 200°C 以下の低温域において構造相変態を示す。低温相、高温相ともに縮退半導体であるが、キャリア濃度が大きく変化するため、相変態時にステップ的な熱伝導度変化を示す。さらに、元素置換により相変態温度を調整することが可能であり、相変態を用いた熱流スイッチング素子の構成材料として適している¹⁾。

我々は $\text{Ag}_2\text{S}_x\text{Se}_{1-x}$ 材料を用いた素子において、素子の温度を精密に制御することで、相変態温度直下の領域で、顕著な素子表面の冷却現象（潜熱を起源とする熱ポンピング現象）を観察した²⁾。

本研究では、この熱ポンピング現象に着目し、素子を構成する薄膜の組成、および、膜厚依存性を長い時間範囲で解析することで、最も良い熱流スイッチング特性を示す条件を探索した。

実験方法

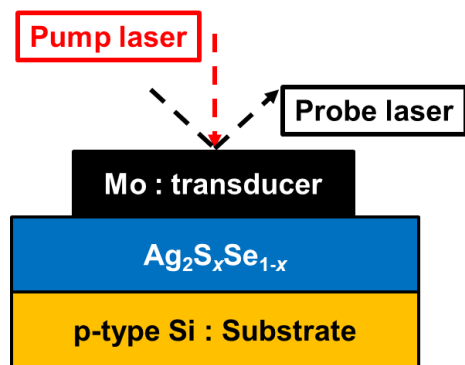


図 1 本研究で作製した熱流スイッチング素子と TDTR 測定の様式図

熱流スイッチング素子構造は図 1 に示す。

$\text{Ag}_2\text{S}_x\text{Se}_{1-x}$ 層は Si 基板上に分子線蒸着法によって成膜した。X 線回折にて相同定および構造解析を行った。SEM-EDX、および、EPMA により組織観察と組成分析を行った。熱伝導度測定と熱流スイッチング特性の解析には、時間領域サーモリフレクタンス法（Pico Therm 社製 nano TR および pico TR）を用いた。

結果

図 1 の熱流スイッチング素子で観測された低温相、高温相におけるパルス加熱後の素子表面温度の時間変化を図 2 に示す。相変態時の潜熱によって TDTR 信号が負の値となっており、相変態に伴う吸熱が生じていることを確認した。詳細な実験結果、および、解析結果は、当日の講演にて報告する。

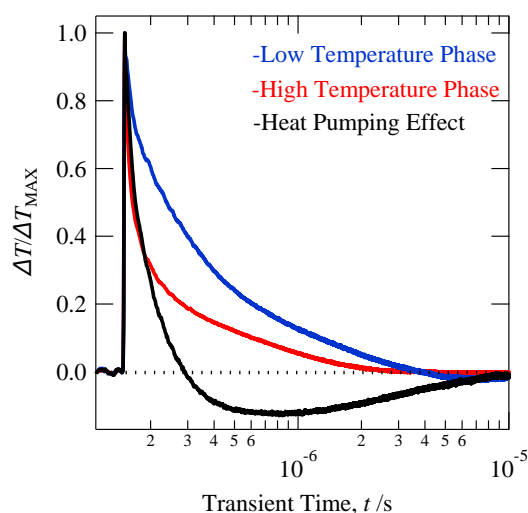


図 2 素子（図 1）表面温度の過渡曲線

参考文献

- [1] K. Hirata *et al.*, *J. Elec. Mater.* **49**, 2895 (2020).
- [2] 丸地智也, 第 83 回応用物理学会秋季学術講演会, 23a-C103-2