

研究終了報告書

「近接場光を用いたフォノン熱輸送過程の可視化」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：田口 良広

1. 研究のねらい

ナノデバイスの局所的なフォノン熱輸送の振る舞いを明らかにすることで、新たな熱制御技術の確立や電子デバイスの熱的劣化機序の解明が実現し、デバイスの高性能化に大きく貢献する。これまで光学的計測技術や微細加工を施したマイクロセンサを用いたナノデバイスの熱伝導率測定からフォノン熱輸送の理解が進んできた。例えば反射率の温度依存性を利用したサーモリフレクタンス法を用いてナノ薄膜のサイズ効果やフォノン結晶のフォノン熱輸送の描像の理解などが目覚ましい。また、カーボンナノチューブなどを懸架したマイクロセンサによって1次元ナノ材料の熱輸送の理解が進んでいる。しかしながら、従来法では空間分解能が制限されているため、空間平均的な描像としての議論に留まっており、メソスコピック領域のフォノン熱輸送過程を可視化する技術が求められている。

ナノスケールの局所的なフォノン熱輸送を光学的に可視化するためには(1)光の回折限界を打ち破る新しい光センシング技術と(2)ナノ領域を選択的かつ自由自在に光で局所加熱する技術が必要不可欠である。そこで本研究は、近接場光と呼ばれるナノスケールに局在した光を用いて光の回折限界を超える高い空間分解能でナノワイヤデバイスのフォノン熱輸送を可視化する技術を開発する。特に、エレクトロ/サーモマイグレーション等によってナノワイヤデバイスが劣化する状況下において熱輸送動態を解明できる新たな測定手法を提案する。

2. 研究成果

(1) 概要

研究者はこれまでに近接場光を用いた温度計測手法の開発を行ってきた。本研究では、研究者が開発した近接場偏光熱顕微鏡にフェムト秒レーザーを用いたポンプ・プローブ技術を導入し、ナノワイヤを極短パルス近接場光で加熱し、ナノワイヤの温度応答を近接場光によって検知することで、メソスコピック領域のフォノン熱輸送過程を可視化することを目標に研究・開発した。特に、励起する近接場光を波長掃引することでスペクトロスコピックなフォノン熱輸送センシング技術を提案した。

まず、波長掃引可能な近接場ファイバースローブの開発を行った(研究テーマ A「高効率な近接場ファイバースローブの開発」)。特に赤外領域において従来の近接場ファイバースローブでは赤外光伝送損失が極めて大きく、高効率な赤外近接場光励起は難しい。研究者は、赤外伝送に優れた光ファイバーとプローブ先鋭化に特化した光ファイバーを融着接続し、高効率な近接場ファイバースローブの開発に成功した。

次に、近接場光による試料加熱の妥当性を検証した(研究テーマ B「ナノスケール近接場光加熱技術の開発」)。近接場光によってナノスケールに加熱された試料の温度分布を測定することはサーモグラフィなど従来技術では不可能である。そこで、自己組織化単分子膜が熱的に脱離する性質に着目し、加熱領域をナノスケール空間分解能で定量的に分析する手法

を確立した。

また、フェムト秒レーザーシステムと光遅延光路によって構成されるポンプ・プローブ技術を導入した近接場偏光熱顕微鏡の装置を立ち上げ、ナノメートル空間分解能でフォノン熱輸送過程を可視化できるシステムを構築した(研究テーマ C「高感度なフォノン熱輸送過程の可視化技術の開発」)。本システムによって得られた信号光が、近接場光によって加熱されたナノワイヤが熱輸送によって高速に緩和していく過程を示していることを検証実験から見出し、ナノワイヤのフォノン熱輸送動態を高い時間空間分解能でセンシングできることを示した。

(2) 詳細

研究テーマ A「高効率な赤外用近接場ファイバプローブの開発」

波長掃引型近接場励起を実現するために、赤外用近接場ファイバプローブの設計・作製を行った。本研究で提案する赤外用近接場ファイバプローブの概要を図1に示した。従来用いていた近接場ファイバプローブの母材は Ge ドープ型の石英ファイバーであり、赤外領域で吸収が大きい。そこで、赤外波長領域で透過特性に優れたフッ化物ファイバーに、透過損失を低減させるために極端に短い Ge ドープ型ファイバーを融着接続することで、赤外用近接場ファイバプローブの開発を行った。まず、図2に示すように、Ge ドープ型ファイバーの透過率を測定し、透過率が 99%になる Ge ドープ型ファイバー長さを決定した。

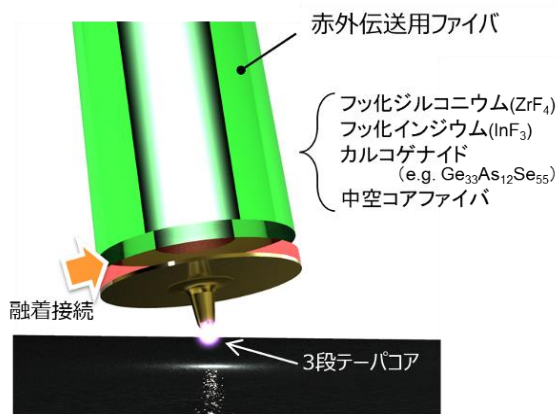


図1 赤外用近接場ファイバプローブ概要

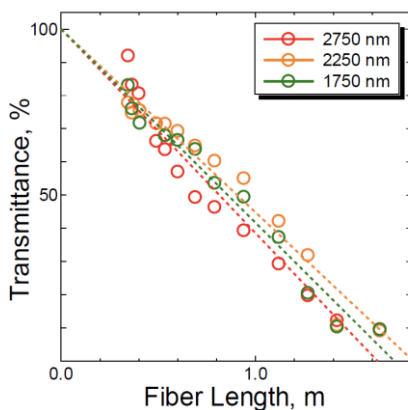


図2 Ge ドープ型ファイバーの透過特性

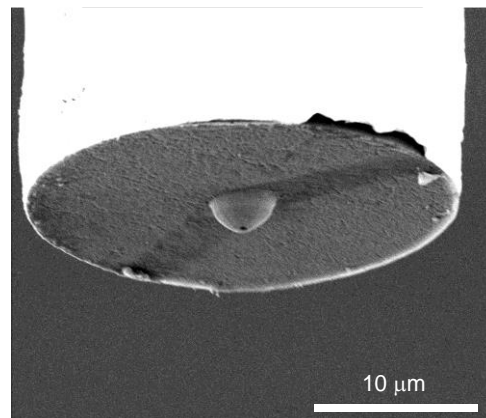


図3 作製した赤外用近接場ファイバプローブ

次に、フッ化物ファイバーとGeドープ型ファイバーの融着接続方法について検討した。素材（特に融点）の異なる 2 種類のファイバーを融着接続するのは非常に難しい。接続パラメータを適切に選択することによって、2 種類のファイバーを接続することに成功した。さらに、Geドープ型ファイバー先端を先鋭化させるエッチングパラメータを明らかにするとともに、新たな開口形成技術を構築した。図3に示すように、赤外用近接場ファイバークローブの作製に成功し、赤外領域で従来の性能を凌駕する高い近接場励起効率を達成した。

研究テーマ B「ナノスケール近接場光加熱技術の開発」

近接場光を用いたフォノン熱輸送過程の可視化を実現するためにナノスケールでの局所加熱を実現する必要がある、ナノスケールホットスポット形成の解析的・実験的検証を行った。近接場ファイバークローブによる近接場フォトサーマル効果の誘起と、近接場フォトサーマル効果によるホットスポット径を解析的かつ実験的に検証した例は国内外を見ても存在しない。そこで mPEG チオールを金基板上に修飾したサンプルに対して近接場フォトサーマル効果を誘起し、熱的に脱離する過程からナノスケールホットスポットの形成を確認した。まずホットスポット形成に関して、解析的に温度分布を明らかにした(図4)。図5に示すように、近接場光の励起時間を変えることによって熱的脱離径を制御することができることがわかり、図6に示すように 10 μs 励起によってナノスケールのホットスポットが形成可能であることが示された。これ以上小さいホットスポットについては SEM 等で観察が困難であるが、見積もられた脱離径は FDTD シミュレーション結果と良好に一致しており、解析手法の健全性が示されたことから、FDTD シミュレーションによる提案手法の妥当性が実験的に確認できたといえる。

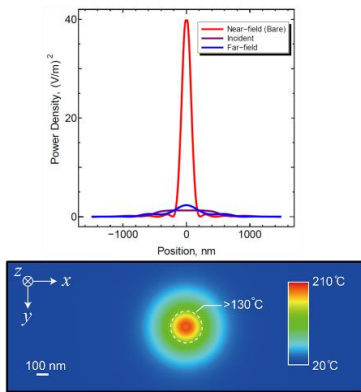


図4 近接場フォトサーマル効果の分布解析

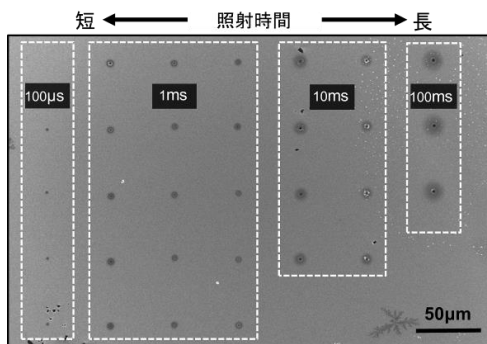


図5 近接場フォトサーマル効果による熱的脱離

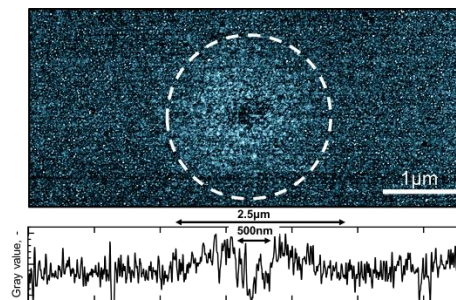


図6 10 μs 近接場光加熱による熱的脱離

研究テーマ C「高感度なフォノン熱輸送過程の可視化技術の開発」

近接場偏光による過渡温度応答特性を検出し、フォノン熱輸送過程の可視化を実現するために、研究者が開発してきた近接場偏光熱顕微鏡にポンプ・プローブ技術を融合した近接場センシングシステムを新たに構築した。フェムト秒パルスレーザー光源、光学遅延装置、グラインレーザープリズムおよびバランスディテクタから構成される提案手法を用いて、近接場光によるナノワイヤにおける局所ホットスポットの生成とその過渡的な温度変化信号を初めて検出することに成功した。また、遠視野照明が可能なセンシングシステムを構築し、遠視野照明による過渡温度応答と近接場センシングシステムによる過渡温度応答を比較し、提案手法の妥当性を明らかにした。

3. 今後の展開

本提案手法を用いることによって、従来走査型電子顕微鏡によって劣化状態を分析していたナノワイヤデバイスにおいて、劣化加速試験中にナノワイヤデバイスが劣化していく様子をナノワイヤの熱輸送変化からモニタリングすることができるようになる。劣化加速試験用チャンバー内に近接場ファイバースコープを導入し、加熱波長を短波長から長波長まで掃引し、加熱深さを制御することでフォノン熱輸送形態の変化を測定し、ナノワイヤデバイスの劣化に伴う構造変化を熱輸送変化として非破壊で定量的にイメージングが可能となる。

本研究における3つの研究テーマで開発したそれぞれの要素技術は、今後様々な展開が期待できる。研究テーマ A で開発した高効率な赤外用近接場ファイバースコープは、本研究以外にもナノ領域の赤外吸収分光への展開が期待される。特に長いファイバーを取り廻せるという特徴から、クライオスタットや真空チャンバーといった環境が制御されたシステムにおいて、特殊な改良を加えることなく簡単に導入できるため、ナノ分析の汎用的な活用促進が期待できる。

研究テーマ B で開発したナノスケール近接場光加熱技術は、光熱刺激の光源として様々な系に適用できる。また、ホットスポットの評価に用いた自己組織化単分子膜は温度の示強性テンプレートとして様々な分野で活用できると期待される。

研究テーマ C で開発した近接場偏光熱顕微鏡は、ナノワイヤデバイス以外にも構造異方性を有する機能性高分子材料への展開が可能である。特に短波長領域から赤外領域までの幅広い波長範囲で励起可能であることは、新たな分析手法として期待される。

4. 自己評価

本研究では、近接場光を用いたフォノン熱輸送過程の可視化技術を確立するために、3つの要素技術について研究・開発を行い、それぞれの妥当性を明らかにすることに成功している。一方で、波長掃引した近接場光によるフォノン熱輸送動態の解明に向けては、S/N 比の向上などの今後の課題が明らかとなった。コロナ禍という中で研究実施体制を見直し、実験スケジュールを工夫することでコロナ禍の影響を最小限に抑えることができ、研究費執行状況も適正であった。本研究で明らかとなった新し知見の多くは、新しいサーマルセンシング以外にも多くの分野へ今後展開が期待できるものである。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数:0件

(2) 特許出願

研究期間累積件数:0件(特許公開前のものも含む)

(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)

【国際会議(招待講演)】

1. Y. Taguchi, “Optical Micro- and Nanoscale Sensing using MOEMS Technology for Thermophysical Properties Engineering”, The International Symposium on Optoelectronic Technology and Application OTA2018 Conference on Micro Optics and MOEMS 2018 (2018), China.
2. Y. Taguchi, “Recent Development of Optical Sensors for Thermal System Design”, 2nd International Workshop on Phase Interfaces for Highly Efficient Energy Utilization – For dramatic advancement of energy utilization efficiency–(2018), USA.
3. Y. Taguchi, “Recent Progress of Optical Sensing Techniques for Thermophysical Properties Engineering”, Japan–China Heat Transfer Symposium 2020 (2020), Japan.

【著書】

1. 「マイクロ・ナノ熱工学の進展」編集委員会編、マイクロ・ナノ熱工学の進展、株式会社エヌ・ティー・エス、(2021)。