還元熱処理により作製した酸化チタン自然超格子の周期構造解析

Analysis of periodic structure of TiO_2 superlattice crystal by reduction annealing

[1]名大，[2]神戸大，[3]京大，[4]産総研　○原田 俊太[1]，田中 克志[2]，乾 晴行[3]，
田川 美穂[1]，宇治原 徹[1, 4]
Nagoya Univ.[1], Kobe Univ.[2], Kyoto Univ.[3], AIST[4]
Shunta Harada[1], Katsushi Tanaka[2], Haruyuki Inui[3], Miho Tagawa[1], Toru Ujihara[1]
E-mail: shunta.harada@nagoya-u.jp

【はじめに】最近の研究で、微細加工により 100 nm 程度の周期構造を有するフォノニック結晶が実現し、低温において波動性を利用した熱伝導の低減が実証され、高度な熱伝導制御が期待されている[1]。室温において波動性を利用した熱伝導制御を実現するためには、高周波フォノンの熱伝導を抑制することが必要となる[2]。そこで我々は、周期的な面欠陥を含む酸化チタン自然超格子結晶に着目し[3]、サブ nm~数 nm の周期構造により高周波フォノンの熱伝導を抑制し、フォノニック結晶と合わせることによって、室温においても波動性を利用した熱伝導制御を行うことを目指している。本研究では、透過電子顕微鏡法（TEM）により面欠陥の周期と周期界面の粗さを評価した。

【実験方法】ベルヌーイ法により作製されたルチル型 TiO_2 単結晶を真空中で 1500℃、24 時間の還元熱処理を行い、酸素を欠損させた酸化チタン（$TiO_{2-\delta}$）を作製した。イオンミリングにより試料の薄片化を行い、TEM により周期構造の評価を行った。

【結果・考察】作製した試料から得られた制限視野回折図形には、ルチル構造に起因する基本反射に加えて 132_{rutile} を 26 等分する位置に超格子反射が観察され、$(132)_{rutile}$ 面欠陥が 26 倍周期（2.7 nm 周期）で導入されていることが分かる。走査透過電子顕微鏡による観察（Fig. 1(a)）においても、周期の乱れはほとんど観察されず、原子レベルで高い周期性を有することが明らかとなった。また、Fig. 1(b) に示すように、$(132)_{rutile}$ 面欠陥は、$(011)_{rutile}$ 面欠陥と $(121)_{rutile}$ 面欠陥が交互に配置した構造であった。より広い範囲で観察を行ったところ、周期界面の粗さは、$(132)_{rutile}$ の面間隔（0.1 nm）よりも小さいことが明らかとなった。Table 1 に示すように、酸化チタン自然超格子はフォノニック結晶と比較しても高い周期性と完全性の高い周期界面を有することから、zone-holding 効果による群速度低下により、高周波フォノンの熱輸送が抑制されることが期待される。

[1] J. Maire et al., Sci. Adv., 3 (2017) e1700027. [2] M. Maldovan, Nature, 503 (2013) 209.
[3] S. Harada et al., J. Appl. Phys., 108 (2010) 083703.

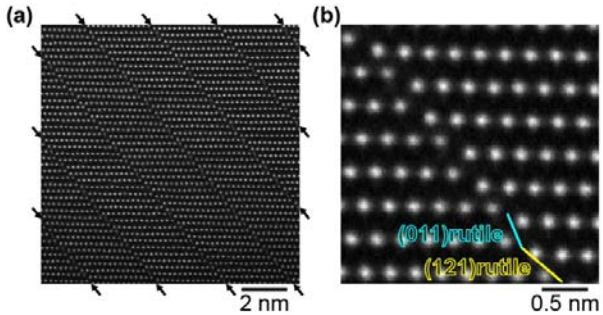

Fig. 1: $[1\text{-}11]_{rutile}$ 入射の走査透過電子顕微鏡像。輝点が Ti 原子コラムの位置を示している。

	$TiO_{2-\delta}$ (this study)	phononic crystal[1]
period	**2.7 nm**	300 nm
periodicity disorder	**0.1 nm (3.7%)**	6 nm (2.0%)
boundary roughness	**> 0.1 nm (> 3.7%)**	2.5 nm (0.8%)

Table 1:酸化チタン自然超格子とフォノニック結晶の周期構造の比較。

© 2018年 応用物理学会