

界面付近の電子・フォノン間の非平衡熱輸送を用いた 金属・絶縁体超格子の熱伝導率低減

Reduction of Thermal Conductivity of Metal-Insulator Superlattice using

Non-Equilibrium Electron-Phonon Heat Transport near the Interface

東京大工¹, 日立製作所 R&D Group², °(M2)金 景中¹, 黒崎 洋輔², 深谷 直人²,

籾内 真², 伊良 勇亮¹, 邵 成¹, 早川 純², 塩見 淳一郎¹

Dept. of Mech. Eng., Tokyo Univ.¹, R&D Group, Hitachi Ltd.², °(M2) Kyoungjung Kim¹,

Yosuke Kurosaki², Naoto Fukatani², Shin Yabuuchi², Yusuke Ira¹, Cheng Shao¹, Jun Hayakawa²,

Junichiro Shiomi¹

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

近年、熱電変換を用いたエネルギーハーベスティング技術が IoT デバイスやウェアラブルデバイスなどの電力供給原として注目を集めている。熱電変換効率を向上させるために多結晶体、超格子、薄膜などナノ構造化によるフォノン輸送のサイズ効果を利用し、熱伝導率を低減するアプローチがよくとられている。一方、更なる効率向上のためにより低い熱伝導率が求められている中、金属と非金属を接合した界面を用いることで、材料の熱伝導性を低減する手法が挙げられている。金属と非金属の界面付近の熱輸送では熱キャリアの違いに起因する熱キャリア間の非平衡性が強い領域（電子・フォノンの非平衡域）が表れ、電子・フォノン間のエネルギー交換(Electron Phonon Coupling : EPC)が行われる。このエネルギー交換過程がフォノンチャンネル（界面熱抵抗）に付随する追加的な熱抵抗として働き、系全体の熱伝導性を低減すると予想されている。

先行研究では界面熱抵抗として界面付近での EPC による影響を議論した。一方、そのサイズ依存性が調べられる系を用いることで、界面付近の電子・フォノン間の非平衡熱輸送と系全体の熱伝導におけるその影響を理解できるだろう。本研究では金属・絶縁体超格子を用いて、界面付近の非平衡域に対して界面間の距離を操作し、その熱伝導率を計測した。さらに、計測結果を超格子の実効熱伝導率の理論計算を用いて解析することで、超格子構造内の熱輸送における界面付近での電子・フォノン間の非平衡熱輸送の影響とそのサイズ依存性を研究した。

超格子の熱伝導率の計測には時間領域サーモリフレクタンクス法(TDTR)を用いた。超格子試料は EPC 強さを考慮し、異なる 3 種類(Ta, AuSi, Cu)の金属層と MgO の絶縁体層で構成される超格子を、さらに、異なる 2 種類(Type I, Type II)構造を持つ超格子試料を用いた。Type I の構造は金属層と絶縁体層が同一の単位層厚さを持ち、その単位層厚さを操作する。Type II の構造は 1 層の金属層と絶縁体層を合わせた 1 ユニットの厚さを 20 nm に固定したまま、金属層の厚さを操作する。Type I の超格子試料では単位層厚さが薄くなるにつれ熱伝導率が低減された。また、Type II の超格子試料のうち AuSi/MgO と Cu/MgO 超格子でのみ金属層の厚さが厚いほど熱伝導率が低減された。

上記の計測結果に加え、界面付近での EPC の影響をより明確に解析するため、第一原理計算から求めた物性値をもとに二温度モデル(Two Temperature Model : TTM)と熱回路網法(Thermal Resistance Circuit : TRC)を用いて超格子全体の熱伝導率の計算を行った。TRC では金属層内の電子とフォノンそれぞれの熱抵抗を並列に、金属層、絶縁体層とそれらの界面熱抵抗を直列に考えて、超格子全体の熱伝導率を計算した。TTM では金属層内の界面付近での EPC による熱抵抗を金属層の電子熱抵抗に直列に付加する熱抵抗として、超格子全体の熱伝導率を計算した。各金属と絶縁体の界面熱抵抗は TTM による計算結果と実験値の間の差を最小にする値を用いた。両モデルから計算した Ta/MgO 超格子の理論熱伝導率は実験値とよく一致したものの、Cu/MgO, AuSi/MgO 超格子では TTM から計算した熱伝導率のみが実験値をよく再現して、モデル間の隔たりも大きい。TRC が TTM における金属層内の EPC が無限に大きいと近似したモデルであることから EPC が比較的弱い金属で構成される AuSi/MgO や Cu/MgO 超格子内の熱伝導では電子・フォノン間の非平衡熱輸送が重要な役割を果たすことが分かった。また、界面付近の非平衡熱輸送による影響が金属層の厚さに依存することから界面付近の非平衡域による熱抵抗のサイズ効果であると考えられる。