

一般セッション(口頭講演) | 22 合同セッションM 「フォノンエンジニアリング」 : 22.1 合同セッションM 「フォノンエンジニアリング」

📅 2025年3月15日(土) 10:00 ~ 11:15 📍 K501 (講義棟)

## [15a-K501-1~4] 22.1 合同セッションM 「フォノンエンジニアリング」

八木 貴志(産総研)

10:00 ~ 10:30

[15a-K501-1]

[第46回優秀論文賞受賞記念講演] 太陽光加熱・放射冷却駆動の単一材料異常ネルンストサーモパイル

○千葉 尚樹<sup>1,2,3</sup>、石井 智<sup>1</sup>、モダック ラージクマール<sup>1,2</sup>、内田 健一<sup>1,2</sup> (1.NIMS、2.東大、3.東芝)

10:30 ~ 10:45

[15a-K501-2]

SiGe超薄膜界面層によるSi薄膜の熱伝導率低減

○小田島 綾華<sup>1,2</sup>、柳澤 亮人<sup>1</sup>、澤野 憲太郎<sup>1,2</sup>、野村 政宏<sup>1</sup> (1.東大生研、2.東京都市大)

10:45 ~ 11:00

[15a-K501-3]

O<sup>2-</sup>アニオンを選択的変位したエピタキシャルSnO<sub>2</sub>薄膜/r-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>における熱伝導率低減

○石部 貴史<sup>1,2</sup>、成瀬 延康<sup>3</sup>、目良 裕<sup>3</sup>、山下 雄一郎<sup>4</sup>、中村 芳明<sup>1,2</sup> (1.阪大院基礎工、2.阪大OTRI、3.滋賀医科大、4.産総研)

11:00 ~ 11:15

[15a-K501-4]

ホイスラー合金Fe<sub>2</sub>VAlにおける格子熱伝導度を抑制するフォノン分枝の不純物依存性

○筒井 智嗣<sup>1,2</sup>、木村 耕治<sup>3</sup>、宮崎 秀俊<sup>3</sup>、西野 洋一<sup>3</sup>、林 好一<sup>3</sup> (1.JASRI、2.茨大院理工、3.名工大院)

# 太陽光加熱・放射冷却駆動の単一材料異常ネルンストサーモパイル

## Single-material-based anomalous Nernst thermopile driven by solar heating and radiative cooling

NIMS<sup>1</sup>, 東大<sup>2</sup> (現所属: 東芝<sup>3</sup>)

○千葉 尚樹<sup>1,2,3</sup>, 石井 智<sup>1</sup>, モダック ラージクマール<sup>1,2</sup>, 内田 健一<sup>1,2</sup>

NIMS<sup>1</sup>, Univ. of Tokyo<sup>2</sup> (Current Affiliation: Toshiba<sup>3</sup>)

○Naoki Chiba<sup>1,2,3</sup>, Satoshi Ishii<sup>1</sup>, Rajkumar Modak<sup>1,2</sup>, and Ken-ichi Uchida<sup>1,2</sup>

E-mail: naoki2.chiba@toshiba.co.jp

異常ネルンスト効果は、磁性体において温度勾配と磁化の垂直方向に電場が生成される熱電変換現象である。現行の熱電変換素子で用いられているゼーベック効果とは異なり、熱源に沿った方向への拡張により電圧や電力を増強することができるため、デバイス構造の簡易化による製造コストや接触抵抗の低下が期待されている。主要なデバイス構造としては、昇圧によるセンサー用途に適した「異常ネルンストサーモパイル」が挙げられ、省面積でのデバイス拡張を可能とするジグザグ構造が取られている。しかしながら、従来の異常ネルンストサーモパイルは、二種類の材料を用いたジグザグ構造により起電力を確保しており[1]、デバイス構造の簡易化というメリットを半減させていた。

本講演では、単一材料で構成される新しい異常ネルンストサーモパイルのデバイスコンセプト[2]を紹介する。太陽光加熱と放射冷却による駆動を想定して、ジグザグにパターニングされた単一強磁性材料の各ワイヤーに、一つおきに黒体塗料をコーティングするだけの簡単なデバイス構造となっている(Fig. 1)。屋外での実証実験からは、外部ヒーターを用いることなく一日を通して熱起電力が発生していることが確認され、太陽光加熱と放射冷却による昼夜を問わない熱電変換というデバイスコンセプトが実証された。外部環境を模擬した室内での実証実験では、黒体塗料の有無によるデバイス間での熱起電力を比較し、本デバイス構造において太陽光加熱・放射冷却の両条件下で一桁程度の出力向上が確認された。本デバイスコンセプトはあらゆる磁性材料に適用可能なものであり、屋外における熱電変換の応用の可能性を広げることが期待される。

[1] Y. Sakuraba *et al.*, *Appl. Phys. Express* **6**, 033003 (2013).

[2] N. Chiba *et al.*, *Appl. Phys. Express* **15**, 093001 (2022).

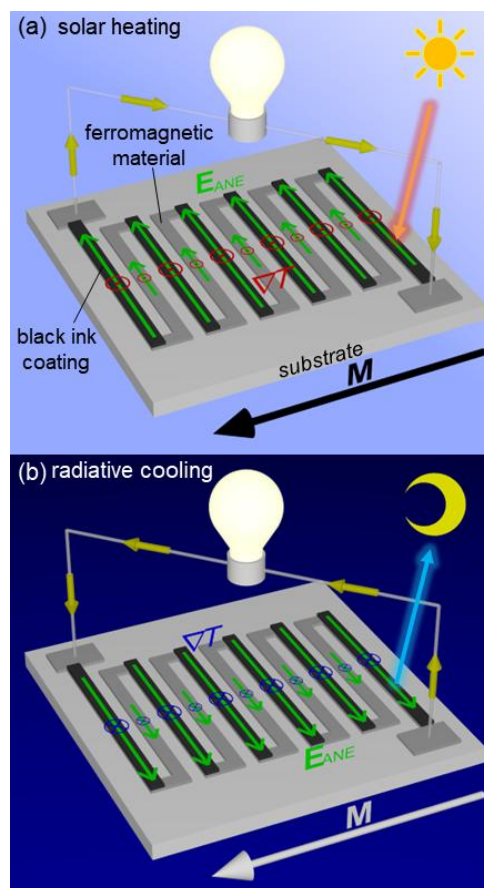


Fig. 1 Schematics of the single-material-based anomalous Nernst thermopile driven by solar heating (a) and radiative cooling (b).

## SiGe 超薄膜界面層による Si 薄膜の熱伝導率低減

## Thermal Conductivity Reduction by SiGe Super-thin Film Interface Layers

東大生研<sup>1</sup>, 東京都市大<sup>2</sup>, °小田島 綾華<sup>1,2</sup>, 柳澤 亮人<sup>1</sup>, 澤野 憲太郎<sup>1,2</sup>, 野村 政宏<sup>1</sup>IIS Univ. of Tokyo<sup>1</sup>, Tokyo City Univ.<sup>2</sup>, °A. Odashima<sup>1,2</sup>, R. Yanagisawa<sup>1</sup>, K. Sawano<sup>1,2</sup>, M. Nomura<sup>1</sup>

E-mail: g2491202@tcu.ac.jp

**背景・目的**：超スマート社会の実現に向け、Si 基板上的熱電デバイスの高性能化が期待されている。熱電性能向上のために Si 材料の高い電気伝導と熱伝導率低減が非常に重要であり、基板構造に SiGe ヘテロ構造を導入することで、熱伝導率の低減が期待されている[1]。これまで円孔配列の Si フォノンニックナノ構造を用いた Si ナノ熱電デバイスを開発し熱伝導率の低減によって高い性能を実現した[2]。本発表では、より電気抵抗の低いデバイス開発に向けて、SiGe 超薄膜界面層を持つ Si 薄膜について、SiGe 界面層のピッチを変化させたときの薄膜面内方向の熱伝導率 $\kappa$ と電気伝導率 $\sigma$ を評価した結果について報告する。

**手法・結果**：SOI 基板上的の厚さ~40 nm の単結晶 Si 層の上に、固体ソース MBE を用いて成長温度 500°C で P をドーピングしながら、厚さ 20, 30, 60 nm のシリコン膜 9, 6, 3 層と厚さ~2 nm の Si<sub>0.8</sub>Ge<sub>0.2</sub> 薄膜 8, 5, 2 層を交互にエピタキシャル成長し、異なるピッチを持つ厚さ~220 nm の超格子構造を作製した (図 1 (a))。Hall 測定により、キャリア濃度  $1.3 \sim 1.8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  を得た。電子線描画とレーザリソグラフィにより作製した、 $\mu$ -TDTR 法と 4 端子測定法による面内方向の $\kappa$ 測定と $\sigma$ 測定が可能な試料構造を図 1 (b)に示す。図 1 (c)に示すように、今回作製した Si/SiGe 超格子構造はどれも、同じ厚さの単結晶 Si と比較して低い $\kappa$ が得られ、SiGe 界面層のピッチが短いほど低い $\kappa$ が得られた。SiGe 界面層のピッチが 20 nm の構造では、 $25 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  まで $\kappa$ を低減させることができた。今回得られた結果は、厚い膜においても SiGe 薄膜界面層によって効果的に $\kappa$ を低減できることを示唆しており、低電気抵抗で高効率な熱電デバイス応用に有望であると言える。

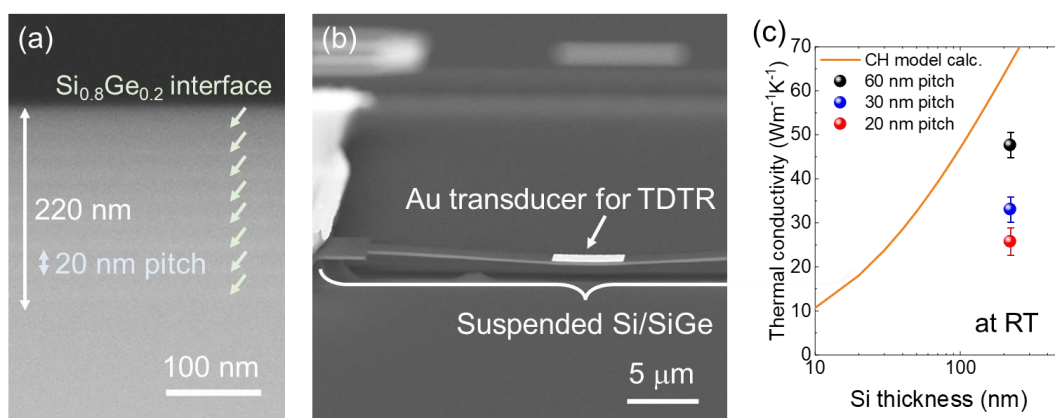


Figure 1 (a) Cross-sectional SEM image of Si/SiGe multilayer structure. (b) SEM image of fabricated micro-bridge structure for  $\mu$ -TDTR and 4 probes measurements. (c) Measured thermal conductivity of Si/SiGe multilayer structures as a function of Si thickness.

**謝辞**：本研究は、JST 未来社会創造事業 (JPMJMI19A1)、および科学研究費補助金 (21H04635) の支援により遂行された。**参考文献**：[1] T. Taniguchi *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces **12**, 25428 (2020). [2] R. Yanagisawa *et al.*, Mater. Today Phys. **45**, 101452 (2024).

## $O^{2-}$ アニオンを選択的変位したエピタキシャル $SnO_2$ 薄膜/ $r-Al_2O_3$ における熱伝導率低減

Thermal conductivity reduction in epitaxial  $SnO_2$  film/ $r-Al_2O_3$  with selectively manipulated  $O^{2-}$  anion

阪大院基礎工<sup>1</sup>, 阪大 OTRI<sup>2</sup>, 滋賀医科大<sup>3</sup>, 産総研<sup>4</sup>

○石部 貴史<sup>1,2</sup>, 成瀬 延康<sup>3</sup>, 目良 裕<sup>3</sup>, 山下 雄一郎<sup>4</sup>, 中村 芳明<sup>1,2</sup>

Eng. Sci. Osaka Univ.<sup>1</sup>, OTRI Osaka Univ.<sup>2</sup>, Shiga Univ. Medical Science<sup>3</sup>, AIST<sup>4</sup>

○Takafumi Ishibe<sup>1,2</sup>, Nobuyasu Naruse<sup>3</sup>, Yutaka Mera<sup>3</sup>, Yuichiro Yamashita<sup>4</sup>,

Yoshiaki Nakamura<sup>1,2</sup>

E-mail: ishibe.takafumi.es@osaka-u.ac.jp

**【背景】** 窓ガラス等の未利用熱を電気として変換する透明熱電発電が注目されている。熱電性能向上には、無次元性能指数  $zT=S^2\sigma T\kappa^{-1}$  ( $S$ : ゼーベック係数、 $\sigma$ : 電気伝導率、 $\kappa$ : 熱伝導率、 $T$ : 絶対温度)の増大が求められる [1]。しかし、これら 3 熱電物性の相関関係のため性能向上は難しい。透明  $SnO_2$  は、社会応用に適した安価・無毒な元素から構成され、かつ  $\sigma$  が高いため透明熱電材料として有望である。しかし、 $\kappa$  が高いため  $zT$  は低い値に留まる。これまで我々は、ドメインエンジニアリングを提案し、低界面欠陥面密度による高  $\sigma$  と界面フォノン散乱増強による低  $\kappa$  を同時実現した [2]。  $\kappa$  は  $\sim 5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  (バルクの 1/10) まで低減されたものの、社会応用には不十分である。そこで本研究では、メインの伝導帯には寄与せず、共鳴準位効果を起こしうる  $O^{2-}$  アニオンに注目し、これを選択的に変位させて、高  $S^2\sigma$  を保ちつつ、O 空孔でのフォノン散乱による大幅  $\kappa$  低減を狙う。具体的には、選択的  $O^{2-}$  アニオン変位を施した  $SnO_2$  薄膜における  $\kappa$  低減の観測とその低減機構の解明を目的とする。

**【方法】** 高真空環境下 ( $3\times 10^{-6}$  Pa) にてパルスレーザー蒸着法を用いて  $SnO_2$  薄膜を  $r-Al_2O_3$  基板上に温度 893 K でエピタキシャル成長した。この薄膜に As イオンを注入し、n 型ドーピングするとともに Sn よりも軽い O を選択的に変位させた。構造評価には、透過型電子顕微鏡法 (TEM)、ラマン分光法を用いた。  $\kappa$  測定には、 $2\omega$  法及び自作 Time domain thermoreflectance 法を用いた。

**【結果】** TEM 観察より、20 nm 間隔のドメイン界面が導入された  $SnO_2$  薄膜がエピタキシャル成長していることがわかった。ラマン分光法より、As イオン注入薄膜の O 空孔量は、未イオン注入のそれよりも多く、加えて Sn 欠損が無いことがわかった。これより、選択的に O 空孔を導入することに成功したと言える。この As イオン注入薄膜の  $\kappa$  は、大幅に低減し ( $\sim 2.5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ )、選択的  $O^{2-}$  アニオン変位が有効であることがわかった。本講演では、 $\kappa$  低減とその機構について詳述する。

**【謝辞】** 本研究の一部は科研費 基盤研究 A (JP23H00258)、基盤研究 B (JP23K26056)、若手研究 (JP24K17613) の支援により行われた。

**【参考文献】** [1] Y. Nakamura, et al., *Nano Energy* **12**, 845 (2015)., [2] T. Ishibe, et al., *Appl. Phys. Lett.* **118**, 151601 (2021).

ホイスラー合金  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  における格子熱伝導度を抑制するフォノン分枝の不純物依存性  
Impurity Dependence of Phonon Branches Connected with Thermal Insulation  
in a Heusler Alloy System  $\text{Fe}_2\text{VAI}$

JASRI<sup>1</sup>, 茨大院理工<sup>2</sup>, 名工大<sup>3</sup>

○筒井 智嗣<sup>1,2</sup>, 木村 耕治<sup>3</sup>, 宮崎 秀俊<sup>3</sup>, 西野 洋一<sup>3</sup>, 林 好一<sup>3</sup>

JASRI<sup>1</sup>, Ibaraki Univ.<sup>2</sup>, Nagoya Inst. Tech.<sup>3</sup>

◎Satoshi Tsutsui<sup>1,2</sup>, Koji Kimura<sup>3</sup>, Hidetoshi Miyazaki<sup>3</sup>, Yoichi Nishino<sup>3</sup>, Koichi Hayashi<sup>3</sup>

E-mail: satoshi@spring8.or.jp

熱電材料はゼーベック係数と電気伝導度、熱伝導度を用いた性能指数でその機能が評価できることが知られている。電子の担う電気伝導度と熱伝導度が Wiedeman-Frantz 則に従う仮定の下で[1]、格子熱伝導度の抑制は性能指数の向上という観点で重要とされる。ホイスラー合金  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  はユビキタスな元素で構成され、熱電材料として期待される母物質として知られる。この  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  では、元素置換において劇的に格子熱伝導度が低下することが知られているが[2-4]、その機構については明らかにされてこなかった。近年、我々は V を Ta および Ti で置換した  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  の単結晶試料の作製に成功し、そのフォノン分散から熱伝導抑制機構に関する知見を得たので報告する[3, 4]。

我々は  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  の V サイトを Ta もしくは Ti に置換した単結晶試料において、放射光 X 線を用いたフォノン分散を調べられる X 線非弾性散乱を SPring-8 の BL35XU で行った。Ta および Ti における格子熱伝導度の抑制は数%という置換量で 10%オーダーの減少を示すという観点では、両者の振る舞いは似通っている。しかしながら、X 線非弾性散乱で得られたフォノン分散は Ta と Ti の置換で大きく異なることが明らかとなった。V を Ta 置換した  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  では母物質である  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  のフォノン分散に加えて置換した Ta 元素由来のフォノン分枝が新たに観測された[3]。一方、V を Ti で置換した  $\text{Fe}_2\text{VAI}$  ではゾーン境界 X 点に向かってあるフォノン分枝でエネルギーが減少する振舞いが観測された[4]。Ta は V の同族元素であり、Ti は V の同周期の元素であることを考慮すると、置換元素によるフォノン分枝の違いは、置換元素の質量数の違いだけではなく、電子構造にも起因していることが予測される。本研究では、光電子分光も行って、元素置換による電子状態の変化も確認することができた。講演では、フォノン分散の置換効果と置換元素によるフォノン分散と電子状態の変化との相関について議論する。

[1] R. Franz and G. Wiedemann, *Ann. Phys.* **165** (1853), 497.

[2] Y. Nishino, S. Deguchi, U. Mizutani, *Phys. Rev. B* **74** (2006) 115115.

[3] K. Kimura *et al.*, *Phys. Rev. B* **101** (2020), 024302.

[4] K. Kimura *et al.*, *Acta Mater.* **281** (2024), 120439.