

フェムト秒レーザ誘起表面周期構造を用いた 薄膜熱伝導制御技術の創成

東京科学大学 工学院 機械系
助教 キム ビョンギ

(2022 年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2022237-C2)

キーワード：フェムト秒レーザ，レーザ誘起表面周期構造，熱伝導

1. 研究の目的と背景

半導体パワーデバイスや量子デバイスの高集積化が進む中で、デバイスから発生する熱の制御は喫緊の課題となっている。また、カーボンニュートラル社会の実現に向け、環境発電や熱電変換デバイスにおいても、材料の熱伝導率を自在に制御する技術が求められている。近年では、材料表面に形成されたナノ構造がフォノンの輸送特性に大きな影響を与えることが報告されており、これを利用した熱流制御技術が注目されている¹⁾。一方で、電子線描画などの従来のナノ構造作製技術は、加工速度が遅く、工数が多いなどの問題があり、大量生産には向いていない。

このような背景のもと、本研究では、フェムト秒レーザ加工によって形成されるナノ周期構造 — LIPSS (Laser-Induced Periodic Surface Structures) — に着目した。LIPSS は、材料表面に表面電磁波を誘起することで、光の波長以下の周期構造を高速かつ大面積に形成可能な技術であり、従来の電子線リソグラフィ等と比べて大幅な加工スループットの向上が期待できる²⁾。また、LIPSS の周期は熱フォノンの平均自由行程よりも短いため、これを活用することで熱エネルギーの輸送に直接影響を与える可能性がある。

しかしながら、これまで LIPSS を薄膜半導体デバイスの熱伝導制御に応用した研究例はほとんどなく、その有効性を定量的に評価する手法も確立されていない。そのため、LIPSS の周期や配向、空間周波数といった構造パラメータがフォノン輸送に及ぼす影響についても知見がないのが現状である。

本研究では、SOI (シリコンオンインシュレーター) 基板を用いた薄膜半導体デバイスに対して、LIPSS のようなシリコンナノワイヤネットワーク構造の熱フォノン輸送の原理を明らかにする^{3,4)}とともに、LIPSS を用いた熱伝導率の能動的制御の実現を目指した。そのために、LIPSS の構造制御と材料の組成を考慮した加工プロセスを確立し、熱伝導率計測技術を構築することで、熱フォノン輸送による熱伝導変調の実測を行った。また、それにより熱電変換やエレクトロニクス熱管理などの応用技術への展開可能性についても検討を行った。

2. 実験方法

2・1 LIPSS 形成実験装置の概要

図 1 に、フェムト秒レーザを用いた LIPSS 作製実験装置

の概要図を示す。本研究では、波長 1030 nm、パルス幅 220 fs の Yb ドープファイバフェムト秒レーザを用いて加工実験を行った。線偏光に整えたレーザビームを、ガルバノスキャナを用いて 1000 mm/s で高速スキャンしながら、SOI 基板のデバイス層 (上部シリコン薄膜層) に LIPSS を形成した。

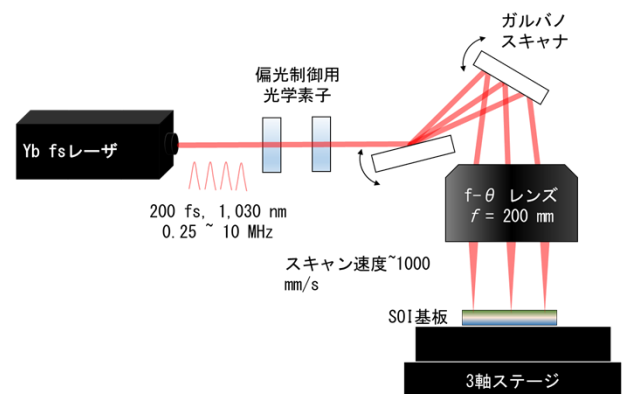


図 1 フェムト秒レーザを用いた LIPSS 形成実験系の概要

2・2 熱伝導率測定実験の概要

LIPSS の熱伝導率を計測するために、 μ TDTR (マイクロ時間領域サーモリフレクタンス法)⁵⁾を用いることを考えた。サーモリフレクタンス法は反射率の温度依存性を用いて、材料の温度応答および熱物性を非接触・非破壊で測定できる方法である。特に μ TDTR では、エアブリッジ化した薄膜の面内熱伝導率を厳密に測定できる。

図 2 に μ TDTR 実験装置の概要を示す。波長 643 nm のマイクロ秒パルスレーザを用いて金トランスデューサを加熱する。金トランスデューサの反射率は、プローブレーザ波長の 514 nm 付近で大きな温度依存性を持つ。つまり、プローブレーザでマイクロ秒領域における金トランスデューサの温度の時間応答を測定できる。 μ TDTR で測定した温度の時間応答を、有限要素法を用いて解析することにより、熱伝導率を求めることが可能となる。

サンプルは真空環境のクライオスタットの中に設置され、光学窓からレーザを照射する。液体ヘリウムを用いてクライオスタットの温度を制御しながら、熱伝導率の計測を行った。

2・3 熱伝導率測定用試料作製

μ TDTR を用いるために、クリーンルームプロセスを活用して、SOI のデバイス層に作製した LIPSS をエアブリッジ化した。図 3 にプロセスのフローチャートを示す。

1. 反応性イオンエッチングを用いて、デバイス層の厚さを予め $1\ \mu\text{m}$ 程度に調整した。
2. レーザリソグラフィーと電子線蒸着を用いて、金トランスデューサを作製した。
3. フェムト秒レーザーで LIPSS を造形した。
4. 反応性イオンエッチングで、LIPSS の厚さを薄くした。これにより、熱フォノン散乱効果を増大できる。
5. レーザリソグラフィーによりエッチングホールを作製し、フッ酸蒸気エッチングより、下部の SiO_2 犠牲層だけ選択的にエッチングし、エアブリッジ化した。

このプロセスで作製したサンプルを、図 2 に示す μ TDTR 実験系を用いて測定し、熱伝導率を得る。

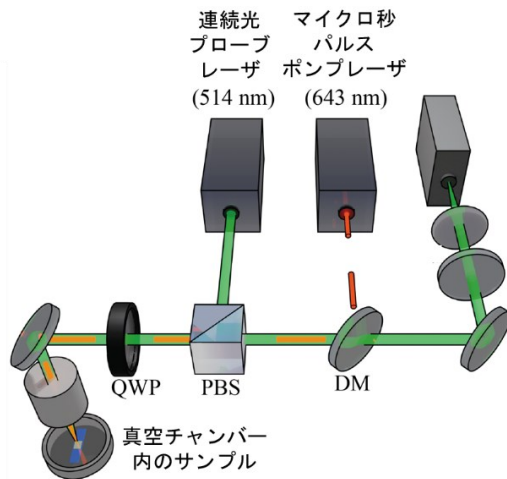


図 2 LIPSS の熱伝導率測定のための μ TDTR 実験系の概要

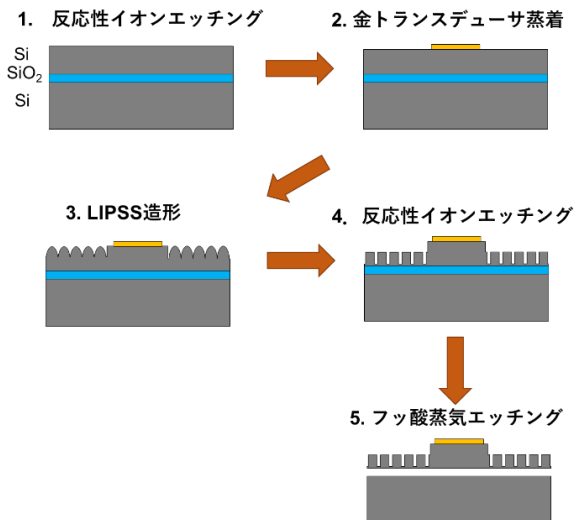


図 3 熱伝導率測定用サンプル作製のフローチャート

3. 結果および考察

3・1 高均一 LIPSS の形成

熱伝導率の制御性を確保するために、レーザーパワー、スキャン速度、パルス繰り返し周波数を最適化し、高均一 LIPSS を生成した。図 4 に本研究で形成した高均一 LIPSS の SEM (走査型電子顕微鏡) 像を示す。図 4(a) に示すように、レーザー波長 (1030 nm) より小さい周期 (860 nm) を持つ LIPSS の形成に成功した。また、差込図は LIPSS 像の空間周波数スペクトルであり、図の中心が $(k_x, k_y) = (0, 0)$ である。 y 方向に、対称的に小さいバンド幅を持つピークがあり (赤枠の中)、高均一 LIPSS が生成できたことが確認できる。

図 4(b) は LIPSS の断面図である。溝の深さは平均 470 nm となり、溝下部の厚さ (最小寸法) は平均 310 nm で形成することが可能であった。シリコンにおける熱フォノンの平均自由行程は室温で 300 nm 程度であり、(最小寸法) \approx (平均自由行程) が実現したため、熱フォノンの散乱が増強できる構造ができたといえる。ここで、溝下部の厚さをさらに小さくすることは、LIPSS によるフォノン輸送抑制効果を増大することにつながる。今後、LIPSS の溝深さの均一性向上に向けた形状制御に取り組むことにより、より高度なフォノンナノ構造が形成できると期待できる。

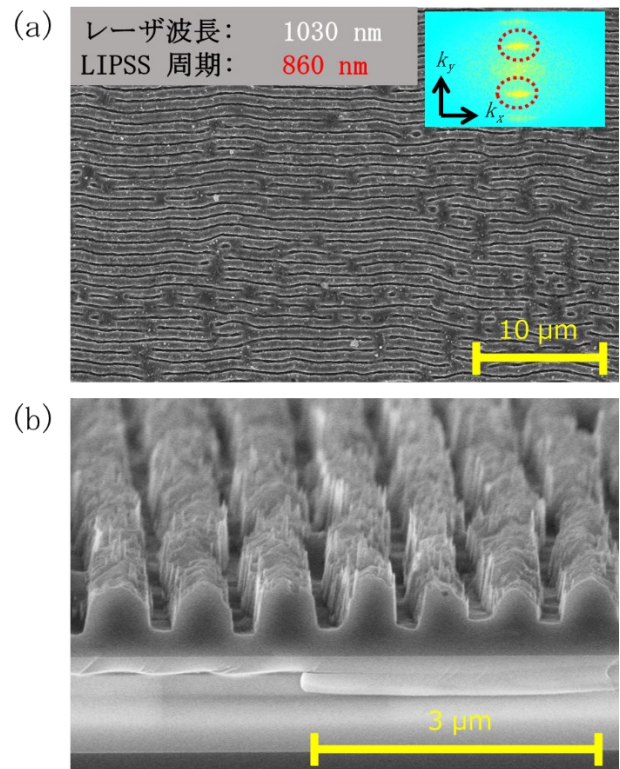


図 4 高均一 LIPSS の SEM 像 (a) 表面像、差込図は LIPSS 像の空間周波数スペクトルを示す。(b) 断面像

3・2 LIPSS の組成

LIPSS は、材料の熔融と再凝固を伴うレーザアブレーション現象により形成されるため、材料の組成変化を伴う場合が多い。また、空気中の酸素と反応し、酸化物を形成しうる。単結晶シリコンの場合、アモルファス化、多結晶化、二酸化ケイ素の形成などにより、電気抵抗の増加やゼーベック係数の低下が見込まれ、フォノン輸送のみを選択的に制御することが妨げられる可能性がある。それにより、熱電変換素子やエレクトロニクス熱管理への応用が困難になる可能性がある。そのため、ラマン分光法を用いて LIPSS 形成前後の組成を測定した。

図 5 にラマン分光の結果を示す。LIPSS の形成前後ともに、 520 cm^{-1} で単結晶シリコンのラマンピークが現れることが分かる。また、橙色で示すスペクトルは、図 3 のプロセス 4 番の反応性イオンエッチングの前であり、低周波側に多少のオフセット値の増加がみられるが、エッチング後（青色のスペクトル）は単結晶シリコンのピークのみが残ることが分かる。LIPSS 形成後の反応性イオンエッチングは $100\sim 200\text{ nm}$ を削っているため、厚さ数ナノメートルの自然酸化膜、数十ナノメートルのアブレーションの熱影響部が除去され、単結晶シリコンのみが残ることとなる。したがって、単結晶シリコンの優れた電気物性を保つこととなる。

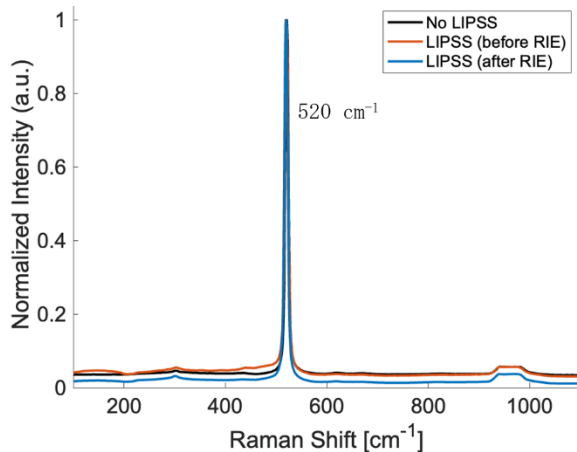


図 5 LIPSS 形成前後のラマン分光の結果

3・3 LIPSS の熱伝導率

図 6(a)に LIPSS の熱伝導率測定のために作製したサンプルの SEM 像を示す。LIPSS のエアブリッジの中央に金トランスデューサを持つ構造の形成に成功した。図 6(b)にマイクロサモリフレクタンズ法を用いた測定結果の例を示す。マイクロ秒領域で金トランスデューサの温度応答が測定でき、有限要素法のシミュレーションで熱伝導率を変化させることでフィッティングが可能であることが分かる。

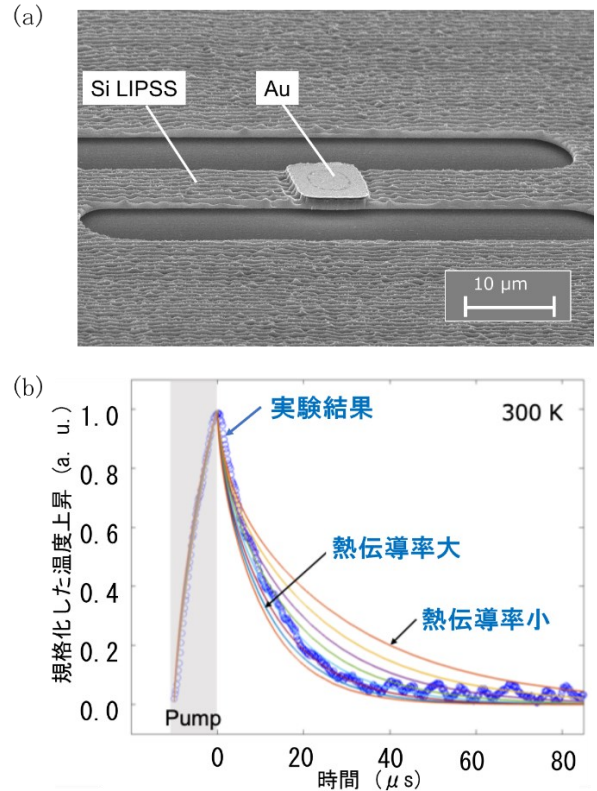


図 6 μ TDTR のために作製したサンプルの SEM 像(a)と測定結果の例(b)。(b)中の実線は有限要素法シミュレーションにより得られた温度応答である。

図 7(a)と(b)にはそれぞれ 300 K と 4 K において、LIPSS の配向に対する熱伝導率の解析結果を示す。 300 K では、LIPSS の配向によらず、18%程度の熱伝導率の減少が確認できた。室温では、溝下部の厚さ($\sim 310\text{ nm}$)がフォノンの平均自由行程とほとんど変わらず、熱伝導率抑制効果が配向に大きく依存しないためであると考えられる。溝下部の厚さをさらに小さくすることで、配向 90 度のときにより顕著な熱伝導抑制効果が表れると予想される。

図 7(b)に示す 4 K における熱伝導率解析結果では、熱フォノンの平均自由行程が $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度と大きく増加するため、熱伝導率減少効果が異方性がより顕著に表れることが分かる。熱伝導率は最大 40%程度減少しており、フォノン散乱が大幅に増大したことが示唆される。珍しくも、熱伝導率は LIPSS の配向が熱流束の方向にたいして 45 度のときに最も大きくなり、異方性は 1.25 となった。低温においては、熱フォノンはスペキュラー散乱の確立が大幅に増加し、LIPSS によるフォノンフィルタリング効果と逆流が表れるため、熱流束と LIPSS が同方向に揃った (0 度) ときの熱伝導率減少が顕著になると考えられる。今後、フォノンモンテカルロ法など、微視的かつ統計的なモデルによる理論検討を行うことで、フォノン輸送のメカニズムを明らかにすることで、LIPSS の構造制御による熱輸送制御が実現すると期待できる。

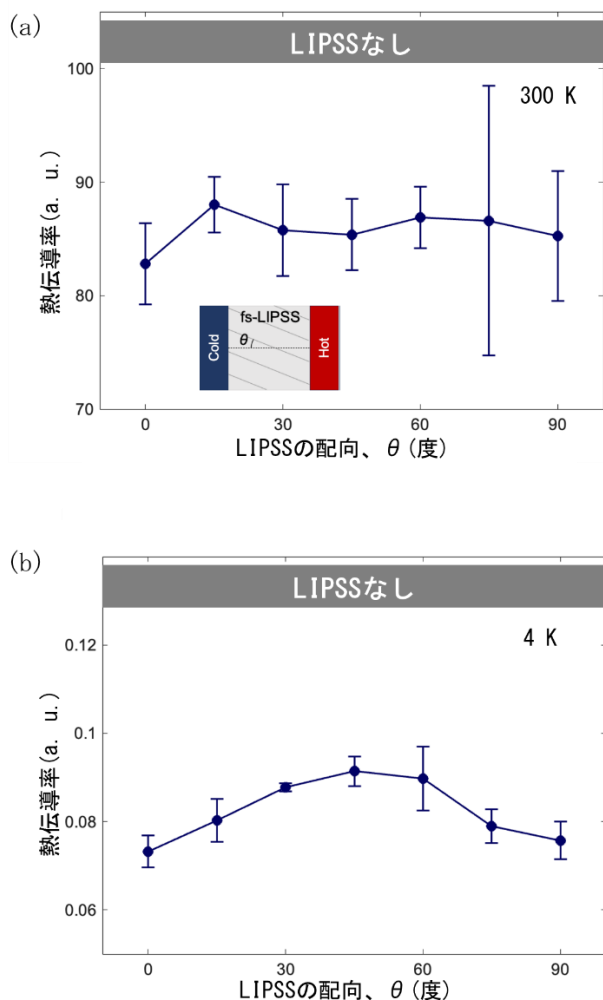


図7 LIPSS の熱伝導率計測結果。(a) 300 K、(b) 4 K。

4. 結論

本研究では、世界で初めて LIPSS を半導体薄膜の熱伝導率制御に応用することに着目し、高速かつ高均一性の LIPSS 形成技術の確立、ならびに反応性イオンエッチングとの組み合わせにより、単結晶シリコンの組成を保持したままナノ構造による熱伝導率の変調に成功した。

300 K においては、LIPSS の配向によらず約 18% の熱伝導率低減が確認され、また 4 K においては、熱流束方向に対して 45 度傾けた場合に最も高い熱伝導率を示す異方性が観測された。これにより、フォノン輸送の変調を通じた

熱伝導制御が可能であることを実証した。

今後は、LIPSS 構造の最適化、電気的・機械的物性を考慮した構造設計、さらにはデバイスへの応用を通じて、フォノンナノ構造の社会実装が一層加速すると予想される。

本研究の成果として、国際ジャーナルへの論文掲載 1 件、国内ジャーナルへの論文掲載 1 件、国内学会での発表 4 件（内 1 件優秀講演賞受賞）を達成した。以下にそのリストをまとめる。

・国際ジャーナル論文

- (1) B. Kim *et al.*, ACS Nano 18 (15), 10557–10565, 2024

・国内ジャーナル論文

- (1) B. Kim and M. Nomura, “日本の伝統模様を応用した半導体の熱流制御”，粉体工学学会誌 62, 4, 224–229, 2025

・国内学会での発表

- (1) キムビョンギ他、第 7 回応用物理学会フォノンエンジニアリング研究会、2023 *優秀講演賞受賞
- (2) キムビョンギ他、第 72 回応用物理学会春季学術講演会、2025
- (3) 半間大基他、第 62 回日本伝熱シンポジウム、2025
- (4) キムビョンギ他、第 9 回応用物理学会フォノンエンジニアリング研究会、2025

謝 辞

本助成により、フォノンナノ構造の社会実装に資する多数の研究成果と連携の構築が実現したことは、誠に意義深いことである。申請者は、これを可能とした天田財団様のご支援に対し、心より感謝の意を表する。

参考文献

- (1) M. Nomura *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 57, 080101, 2018
- (2) B. Öktem *et al.*, Nat. Photon. 7, 897–901, 2013
- (3) B. Kim *et al.*, ACS Nano 18 (15), 10557–10565, 2024
- (4) R. Anufriev *et al.*, Phys. Rev. B 93 (4), 045411, 2016