

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 5 月 18 日現在

機関番号：12605

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13697

研究課題名（和文）アモルファス構造における熱伝導現象の解明と制御

研究課題名（英文）Analysis and control of Heat transfer phenomenon in amorphous structure

研究代表者

堀 琢磨（Hori, Takuma）

東京農工大学・工学（系）研究科（研究院）・准教授

研究者番号：50791513

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：アモルファス構造における熱伝導現象の解明と制御に向けて、結晶材料内の固有振動モード間の相互作用を評価する手法を開発し、一般的に用いられる平衡状態を仮定する緩和時間近似を検証した。シミュレーションには、分子同士の相互作用によって生じる分子の軌跡の時間発展を解く方法である分子動力学法を用いた。この手法により、振動モードのうちの一つを励起させ、その緩和過程を評価することで緩和時間を求めた。この結果、平衡状態を仮定して緩和時間を求める先行研究の結果と概ね一致したが、数割の差が生まれることが明らかになった。したがって、極度に非平衡性が強い系においては緩和時間近似に修正を加える必要があることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年の半導体デバイスの発展に伴い、コンピュータなどの情報機器の小型化や高性能化が進む一方で、排熱の問題がより深刻になっている。特に微細な構造における伝熱現象を明らかにするためにはフォノンの輸送問題を扱わなければならない。しかし、極めて温度差が小さい場合の解析は進む一方で、温度差が大きい、すなわち非平衡性が強い場合のフォノンの緩和現象は明らかになっていない。本研究によって、フォノンの緩和過程は非平衡性が大きい場合と平衡時で概ね一致するが、緩和時間が短くなることが分かった。

研究成果の概要（英文）：In order to understand and control the heat transfer in amorphous structures, a method for evaluating the interaction between phonon modes was developed. The molecular dynamics simulations, solving the time evolution of the trajectory of molecules under intermolecular potential, were utilized for the analysis. By using this method, one of the vibration modes in a crystal was excited and its relaxation process was evaluated to obtain the relaxation time. As a result, it was clarified that the relaxation curves of the excited modes exhibit exponential decay, which agrees with the perturbation theory of phonon scattering. It was also found that the developed method shows larger scattering rates compared with that from the perturbation theory. These results indicated that it is necessary to modify the relaxation time approximation in non-equilibrium systems.

研究分野：熱工学

キーワード：熱伝導 アモルファス 分子動力学

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

アモルファス構造を持つ材料は様々な分野で応用されており、その熱伝導現象は工学的に重要である。その一方で、学術的にはアモルファス構造の熱伝導現象は明らかになっていない点がある。

半導体及び絶縁体の熱伝導の担い手は格子振動である¹。結晶の場合、格子振動を量子化したフォノンの輸送問題を解くことでその熱伝導率が導かれる。この描像はフォノン気体モデルと呼ばれており、フォノンが粒子として空間中を進行することでエネルギーが輸送される。そのため、ボルツマン輸送方程式をモンテカルロ法によって解くことで、ナノ構造化された結晶における熱伝導現象を求めることが可能である²。特に第一原理計算に基づく原子間相互作用の計算と組み合わせることで、より現実を模したシミュレーションが可能となる³。この時、フォノンの緩和時間などがボルツマン輸送方程式のパラメータとなる。

一方でアモルファスにおける格子振動は空間を進行しないディフューズンや局在化するロコンが大半であり、フォノンとは異なり非進行波である⁴。非進行波による熱輸送はフォノンのような振動そのものの移動ではなく、振動同士の相互作用によりエネルギーの輸送が行われ、一般に低い熱伝導率を持つ。そのため、アモルファス構造における熱伝導率は Allen-Feldman 理論によってフォノン気体モデルとは異なる形で定式化されている⁵。こうした理論が報告される一方で、アモルファス構造に見られる熱伝導率のサイズ依存性^{6,7}など、依然として説明がつかない現象も知られている。この問題を解決するためには、格子振動間の相互作用をより明確にする必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、アモルファス構造における格子振動現象の理解を進めるために、分子動力学法および格子動力学法によるシミュレーションによって単一励起されたフォノンモードの緩和現象を解明する。特に、非平衡性が大きい場合にフォノンの散乱頻度によどのような影響があるかを明らかにする。

3. 研究の方法

結晶内で励起された単一モードの緩和過程を追跡するために、分子動力学法を用いた。結晶にはアルゴン、およびシリコンを用いた。以下に計算の流れを示す。まずそれぞれの系において、20 K および 300 K の平衡状態を NVT アンサンブルによって生成する。その後、波数および分枝を指定し、単一のフォノンモードの変位および速度を生成した平衡状態に足し合わせることで、一つのモードが励起された状態を作り出す。ここで、単一のフォノンモードの変位および速度は格子動力学法によって求める。励起後に分子動力学計算を再度行うことで励起したフォノンモードが他のモードへエネルギーを受け渡して緩和していくが、この際のエネルギーの時間変化は先行研究によって報告されている Normal Mode Decomposition 法を用いた^{8,9}。この方法では、分子動力学で求めた変位と速度を格子動力学法によって求めた基準モード成分に投影することで特定のモードの振幅を求めることができ、さらに運動量成分とポテンシャル成分からモードごとの全エネルギーを取り出すことが可能である。以上の操作を 10 種類の平衡状態、72 種類の初期位相、ブリルアンゾーン内に存在するすべてのフォノンモードに対して行い、緩和過程を求めた。

4. 研究成果

(1) 緩和時間近似に基づく散乱頻度との比較

まず、アルゴンにおける励起されたフォノンモードの緩和過程を評価した。励起モードのエネルギーは、温度換算で 200 K、500 K、1000 K の三通りを行った。初期平衡状態、初期位相、励起温度および励起するモードの波数と分枝によらずいずれの場合も、励起したモードのエネルギーの緩和過程は概ね指数的に減衰することがわかった。このことから、非平衡性が極めて強い系の場合でも、緩和時過程の定性的な傾向は緩和時間近似と同様であることがわかった。

次に、これらの結果を指数関数にフィッティングをすることで、各モードの散乱頻度(緩和時間の逆数)を求めた。それぞれの励起温度による結果を比較したところ、いずれの場合も緩和時間近似に基づく散乱頻度と概ね一致したが、平均して 20% 程大きくなることが分かった。すなわち、緩和時間としては減少することが明らかになった。また、励起温度が上がるにつれてわずかながら散乱頻度も上昇することがわかった。一方で、平衡系としての温度は 20 K である一方で、励起温度が最大で 1000 K であることを考慮すると、非平衡性の大きさは散乱頻度に対する影響はさほどは大きくはないと考える。

(2) 励起モードの初期位相による影響の検証

励起するモードの初期位相によって差が生まれるかを検証するため、異なる初期位相ごとの緩和曲線を比較した。この結果、完全ではないものの、それぞれの緩和曲線は平均した値に比べると一致した。

一方で、初期位相を変化させた場合においても、ブリルアンゾーン境界以外のモードは速度と変位を持つエネルギーは 1:1 で変化しない。これはブリルアンゾーン内で点対称なモードを組み合わせることで初めて解消する。したがって、励起するモードの初期状態における速度と変位のエネルギー比を点対称なモードを組み合わせると 1:0 および 0:1 等に変化させ、分子動力学法を用

いて同様のシミュレーションを行った。この結果、単純に初期位相を変化させた場合と同様、励起したモードの緩和曲線及び散乱頻度において互いに有意な違いは見られなかった。すなわち、仮に複数のモードを同時に励起させた場合でも、少なくともそれが点対称な関係である場合は、それらの緩和過程は同一になることがわかった。

(3) 光学モードが存在する結晶との比較

単一励起したフォノンモードの緩和過程のシミュレーションをシリコン結晶においても行った。この際、励起温度は 1500 K とした。緩和曲線の例を図に示す。平衡系の温度が 300 K であり、励起温度はその 5 倍であるため、比較的ノイズが大きいが、アルゴンの場合と同様に、励起したモードのエネルギーは指数関数的に減衰することがわかった。また、光学モードでも同様に指数関数的な減衰が見られたが、その散乱頻度は音響モードに比べて平衡時からの差が大きい結果となった。

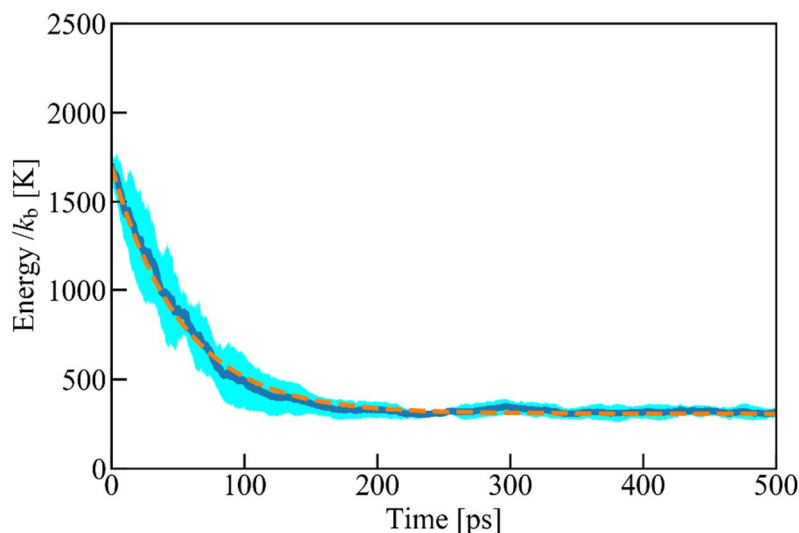


図 シリコンにおける単一励起フォノンモードの緩和過程の例。励起したモードはブリルアンゾーン中の L 点の、音響横波モード。点線は指数関数によるフィッティング曲線。

<引用文献>

1. G. P. Srivastava, The physics of phonons. 1990, Adam Hilger, Bristol.
2. J. P. M. Péraud and N.G. Hadjiconstantinou, Efficient simulation of multidimensional phonon transport using energy-based variance-reduced Monte Carlo formulations. Physical Review B, 84, 2011, 205331.
3. A. J. H. McGaughey, A. Jain, H.Y. Kim, and B. Fu, Phonon properties and thermal conductivity from first principles, lattice dynamics, and the Boltzmann transport equation. Journal of Applied Physics, 125, 2019, 011101.
4. P. B. Allen, J. L. Feldman, J. Fabian, and F. Wooten, Diffusons, locons and propagons: character of atomic vibrations in amorphous Si. Philosophical Magazine B, 79, 1999, 1715.
5. P. B. Allen and J. L. Feldman, Thermal conductivity of disordered harmonic solids. Physical Review B, 48, 1993, 12581.
6. K. T. Regner, D. P. Sellan, Z. Su, C. H. Amon, A. J. McGaughey and J. A. Malen, Broadband phonon mean free path contributions to thermal conductivity measured using frequency domain thermoreflectance, Nature Communication, 4, 2013, 1640.
7. J. L. Braun, C. H. Baker, M. Elahi, K. Artyushkova, T. E. Beechem, P. M. Norris, Z. C. Leseman, J. T. Gaskins and P. E. Hopkins, Size effects on the thermal conductivity of amorphous silicon thin films, Physical Review B, 93, 2016, 140201.
8. A. J. C. Ladd, B. Moran and W. G. Hoover, Lattice thermal conductivity: A comparison of molecular dynamics and anharmonic lattice dynamics. Physical Review B, 34, 1986, 5058.
9. A. J. H. McGaughey and M. Kaviani, Quantitative validation of the Boltzmann transport equation phonon thermal conductivity model under the single-mode relaxation time approximation. Physical Review B, 69, 2004, 094303.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Takuma Hori, Junichiro Shiomi	4. 巻 20
2. 論文標題 Tuning phonon transport spectrum for better thermoelectric materials	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 10～25
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/14686996.2018.1548884	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Takuma Hori	4. 巻 100
2. 論文標題 Verification of the phonon relaxation time approximation by probing the relaxation process of a single excited mode	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214116
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.214116	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takuma Hori	4. 巻 156
2. 論文標題 Role of geometry and surface roughness in reducing phonon mean free path and lattice thermal conductivity of modulated nanowires	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 119818
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.119818	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 堀 琢磨
2. 発表標題 単一励起したフォノンモードの緩和過程及び散乱時間
3. 学会等名 第57回 日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----