

平成21年 5月20日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2008

課題番号：19560205

研究課題名（和文） ナノ構造物の熱物性・熱輸送のモデリング

研究課題名（英文） Modeling of Thermophysical Properties and Heat Transfer for Solids with Nano-scale Structure

研究代表者

松本 充弘（MATSUMOTO MITSUHIRO）

京都大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10229578

研究成果の概要： 本研究は、複雑な構造を持つ電子デバイス素子などのナノ構造物の熱物性を、分子シミュレーション・格子振動（フォノン）解析・マイクロスケールシミュレーションを併用して調べることにより、統合的な熱物性・熱特性シミュレータを開発することを目的として行ったものである。分子スケールシミュレータを構築して大規模なテスト計算を行ったほか、DSMC法をメゾスケールのフォノンダイナミクス解析に応用する方法を提案した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：物性工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：固体熱伝導、分子動力学法、DSMC法、Boltzmann 輸送方程式、フォノンダイナミクス

1. 研究開始当初の背景

(1) ナノ構造物の現状：近年、半導体素子のさらなる高速化をめざし、また熱電素子・光機能素子などへ応用するために、ナノメートルスケールの複雑な構造をもつ素子が数多く提案され実用化されている。例えば、最新のフラッシュメモリの膜厚やゲート幅はいずれも10-30ナノメートル程度にまで微細化されている。また、超格子構造をもつ薄膜素子やナノメートルスケールの構造物をもつ組成傾斜材料など、ミクロな構造物や不均質

性を導入して物性（電子物性、熱物性、力学特性等）を制御する試みも広く行われている。(2) ナノ構造物の熱的性質：こうしたナノスケールの複雑な構造をもつ固体素子について、その電子物性や力学特性に関しては、種々の分光法・可視化法やバンド構造計算・第1原理計算など実験・理論両面からの研究の進展が著しい。しかしながら、高速動作を制限する要因でもある熱伝導率などの熱物性に関しては、測定手段が限られることもあって十分な解明が行われているとは言えない

い状況にある。本研究は、こうしたナノ構造物の熱物性を、分子シミュレーション・格子振動（フォノン）解析・マイクロスケールシミュレーションを併用して調べ、統合的な熱物性・熱特性シミュレータを開発しようというものである。

(3) 研究に至るまで：我々はこれまでに、固体のマイクロ熱伝導機構の解明において、フーリエ変換に基づく従来の格子振動解析に代わって、ウェーブレット変換による新しい解析方法を提案し、これがフォノンの平均自由行程や寿命を定量的に評価するのに有用であることを示してきた。これは、マイクロ伝熱工学の分野では先駆的な研究であると自負している。引き続いて行なった科学研究費補助金：基盤研究(C)「ワイドギャップ半導体デバイス開発のためのナノスケール固体熱伝導モデルの構築」(平成 17-18)では、SiC や SiN など高誘電性半導体材料のマイクロスケール熱伝導解析においてこうした新しい解析方法を適用し、フォノンダイナミクス研究を切り開いてきた。このような蓄積の上に立って、本研究では、ますます複雑化するナノ構造物半導体の熱物性・熱特性を調べるシミュレータを開発するための方法論の開拓をめざすこととした。

2. 研究の目的

フォノンの物性や輸送機構など物理的基礎に立脚したモデル開発を通して、ナノ構造物の熱物性・熱特性を十分な精度で予測できるシミュレータを開発することを最終的な目標として研究を行なった。このために、分子レベル/ナノスケールのシミュレーション技法の開発とモデリングを経て、マイクロメートルスケールの熱輸送予測ができるシミュレータの構築をめざした。2年間でプロトタイプの開発を行い、以下のような系の熱特性予測を可能とする計画を立てた。

(1) 簡単なナノ構造物系の熱伝導特性の直接シミュレーション：例えば、多結晶 Si では平均自由行程 (10~50 ナノメートル程度) を上回るサイズの凹凸や空洞がある系の熱輸送計算を行なう。これは、予測精度を落とす最大の要因となる「粗視化」に訴えることなく、熱特性を分子レベルで直接に計算できることを意味する。これによりフォノン自由行程などの重要パラメタの評価が可能になる。

(2) 界面系や超格子多層薄膜のマルチスケールシミュレーション：最終的な対象である複雑構造をもつ固体の熱物性・熱特性を扱うためには、分子シミュレーションのみでは、現実的な空間スケールに近づけるために、少なくとも 10^6 粒子からなるような巨大系が必要である。この規模の分子シミュレーションは、いつでも可能というわけではなく、数万粒子程度の比較的小規模なシミュレーション結

果から、モデル化（粗視化）を経て連続体計算に至るマルチスケールシミュレーションの技法の開発が望まれる。本研究では、幾つかの具体例のシミュレーションを行い、大規模な直接計算とモデリングの結果を比較検討して、マルチスケールモデリングの妥当性や適用限界を明らかにすることをめざした。

(3) フォノン輸送の新しい計算手法の開発：マルチスケールシミュレーションのために、従来は、フォノン輸送を記述するボルツマン方程式を単純に線形化して数値解析を行なう緩和時間近似がよく行なわれている。しかし、その近似の妥当性や適用限界については十分な検証が行なわれていない。本研究では、このような近似を含まない分子シミュレーションとの比較により、新しいフォノン輸送のモデリングをめざした。

3. 研究の方法

(1) シミュレータ開発：本研究では、最終的に図 1 のような「ナノ構造物の熱特性統合シミュレータ」を構築することを目指している。2年間は完全なシミュレータを構築するまでには至らなかったが、その基礎となるモデルを確立し、効率のよい計算技法を開発することにより、シミュレータプロトタイプは構築できた。

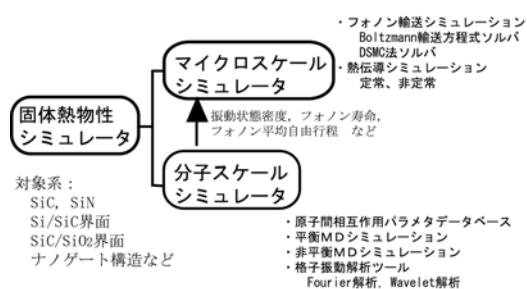


図 1 ナノ構造物の熱特性シミュレータの構想

(2) 分子スケールシミュレーション：主として 10-100nm 程度以下の空間スケールでの熱特性を求めるためのシミュレーションである。各種分子動力学 (MD) 法が主な計算手法となる。これは、原子間ポテンシャルのモデルに基づいて、古典力学的運動方程式を数値積分することにより、原子の運動を追跡するものである。得られた原子の運動軌跡を、格子振動などの観点から解析することで、比熱容量や熱伝導率などの熱物性が直接に得られる。

その予測精度は、用いた原子間ポテンシャルに依存するため、ポテンシャルモデルの検証も併せて行なう。このシミュレーションにより、次段階のマイクロスケールシミュレーションを行なうための物質パラメタ (フォノ

ン寿命, 平均自由行程, フォノン間カップリングパラメタなど) を求めることができる。

対象系は、ナノ構造物を構成する典型的素材である Si, SiO₂, SiC, SiN などの他、Si/SiC 界面系や SiC/SiO₂ 界面系などである。

(2) 格子振動解析・エネルギー輸送解析: 我々がこれまでに開発し、その有用性を検証してきた「ウェーブレット解析法」や「特定モード励起法」によるフォノン解析を主なツールとして、(1)の分子シミュレーションデータを解析する。この方法により、従来は困難であったフォノンの寿命のモード・振動数依存性や平均自由行程の波長依存性などのパラメタをうまく抽出することができる。本解析で得られた格子振動寿命や平均自由行程といったパラメタが、次のマイクロシミュレータの入力となる。

○マイクロスケールシミュレーション: 10nm-1 μ m 程度の空間スケールでの熱特性を求めるためのシミュレーション手法を開発する。非金属系材料の熱伝導を担うフォノンを Boltzmann 輸送方程式のレベルで取り扱う計算手法として、従来から行われているように線形化近似された微分方程式を直接数値積分するのではなく、希薄気体力学の分野で開発されてきた DSMC 法を活用する。このための基礎的な計算コードを作成し、熱輸送解析のための入力パラメタや境界条件の検討を行う。

4. 研究成果

(1) シミュレータ開発: MD 法に基づく分子スケールシミュレータ, ならびに、格子振動

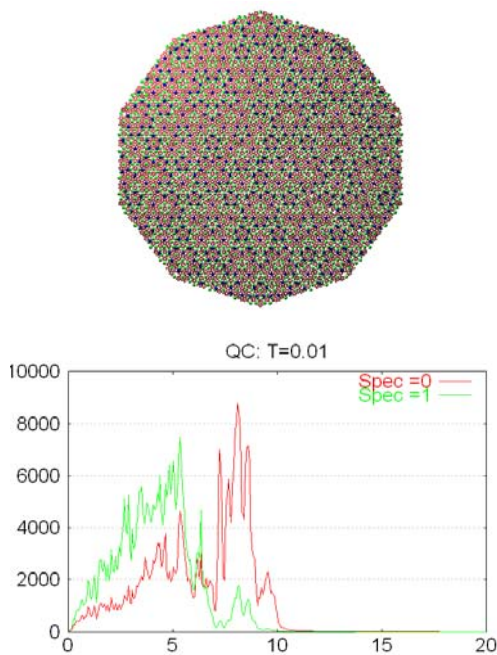


図2 モデル準結晶の分子シミュレーション例。(上) スナップショット, (下) 格子振動解析。

解析ツール群, は実用に近い段階まで開発が進んだ。一方, マイクロスケールシミュレータについては, DSMC 法の応用という新しい手法に立脚することから, プロトタイプを開発してモデル物質について簡単な検証が行なった段階である。これらをすべて含む「統合シミュレータ」の実用化のためには, 今しばらく研究を続行する必要がある。

(2) 分子スケールシミュレーション: いくつかの複雑構造をもつ固体物質について, 熱物性・熱輸送のシミュレーションを行った。図2は一例であり, 2元系モデル準結晶の熱伝導を結晶構造をもつ物質と比較した例である[学会発表(10)]. また, 固体薄膜の熱伝導率の膜厚依存性とそのメカニズムの解明を行なった[雑誌論文(2), 学会発表(4)-(7)].

(3) 格子振動解析: Fourier 変換-逆変換を利用した「特定モード励起」により, フォノンモードの緩和挙動を詳細に解析する方法を新しく開発した。これによりモデル FCC 結晶のフォノンモード解析を行ない, フォノン寿命の振動数依存性を定量的に求めることができた (図3)。また, 図4に示すようにモード間の干渉が強く見られることが明らかとなった[雑誌論文(1), 学会発表(8)]. これは, 従来行なわれている Boltzmann 輸送方程式の線形化 (緩和時間近似) に限界がある

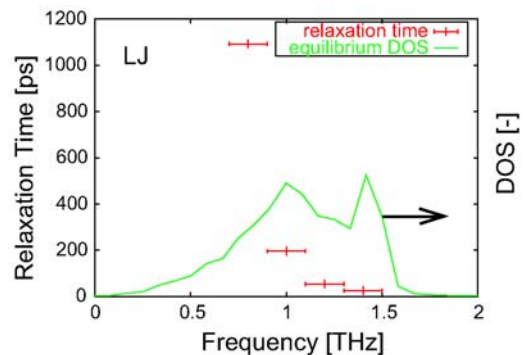


図3 フォノンモード解析により得られたフォノン寿命の振動数依存性の例。

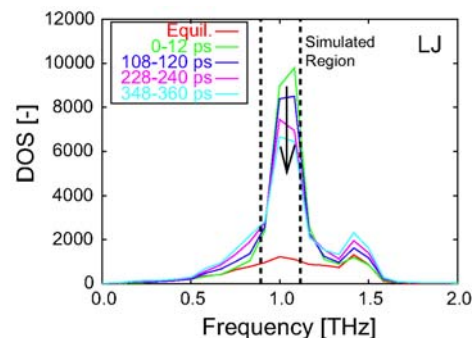


図4 フォノンモード解析により得られたモード間カップリングの例。

ことを意味する。

(4) マイクロスケールシミュレーションのための DSMC 法の開発 : (3)で明らかにしたように, フォノンの Boltzmann 輸送方程式の線形化近似には限界がある. そのため, 線形化を行わず, フォノン-フォノンの衝突を直接に追跡する方法として, 希薄気体力学でよく用いられる DSMC(直接モンテカルロ)法を応用する方法を考案し, プロトタイプコードを開発した. これは, (i) フォノンは質量をもたない準粒子であるため粒子数は保存されない, (ii) 運動量が逆格子ベクトル分だけ変化するウムクラップ過程が存在する, といった点で気体力学のコードとは異なる.

このプロトタイプコードを用いて, 両面に一定の温度差をつけた固体薄膜中の熱流束を求めたところ, 図5に示すような膜厚依存性が得られた[学会発表(1)-(3)]. この傾向は従来の分子シミュレーションや線形化ボルツマン輸送方程式の解析結果と類似しているが, その理由がフォノンの運動量分布の非対称性に由来することを明らかにすることができた.

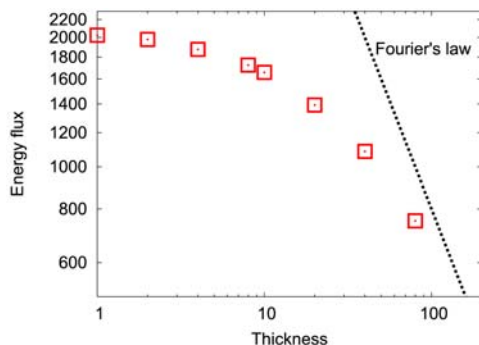


図5 フォノンの DSMC シミュレーションにより得られた, 一定温度差の熱浴間を流れる熱流束の膜厚依存性.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- (1) Mitsuhiro Matsumoto, Tomohisa Kunisawa, Peng Xiao, “Relaxation of phonons in classical MD simulation,” *Journal of Thermal Science and Technology*, Vol. 3 (2008), pp. 159-166, 査読有り.
- (2) Mitsuhiro Matsumoto, “How can molecular simulations contribute to thermal engineering? -Topics from Microbubbles and Microscale Heat Conduction-,” *Journal of Thermal*

Science and Technology, Vol. 3 (2008), pp. 309-318, 査読有り.

[学会発表] (計 10 件)

- (1) 松本充弘, 岡野真弥, 栗田祐介, 「フォノンダイナミクス解析のための DSMC 法の開発」, 日本流体力学会年会, 2009 年 9 月 2-4 日, 東京.
- (2) 岡野真弥, 栗田祐介, 松本充弘, 「固体熱伝導解析のための DSMC 法の開発」, 第 46 回日本伝熱シンポジウム, 2009 年 6 月 2-4 日, 京都.
- (3) 岡野真弥, 松本充弘, 「DSMC 法によるフォノン輸送」, 第 22 回分子シミュレーション討論会, 2008 年 11 月 17-19 日, 岡山.
- (4) Masaya Okano, Mitsuhiro Matsumoto, “Microscale Heat Transfer in Solid Thin Film,” The 7th JSME-KSME Thermal and Fluid Engineering Conference, October 14-16, 2008, Sapporo (Japan).
- (5) 岡野真弥, 松本充弘, 「固体薄膜中の熱伝送」, 第 45 回日本伝熱シンポジウム, 2008 年 5 月 21-23 日, つくば.
- (6) 岡野真弥, 松本充弘, 「固体薄膜の熱伝導再考」, 第 21 回分子シミュレーション討論会, 2007 年 11 月 26-28 日, 金沢.
- (7) 松本充弘, 「分子シミュレーションは熱工学の役に立つか?」, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2007, キーノート講演, 2007 年 11 月 23-24 日, 京都.
- (8) Mitsuhiro Matsumoto, Tomohisa Kunisawa, Peng Xiao, “Relaxation of Phonons in Classical MD Simulation,” ASME-JSME Thermal Engineering Summer Heat Transfer Conference, July 8-12, 2007, Vancouver (Canada).
- (9) Peng Xiao, Mitsuhiro Matsumoto, “Molecular Dynamics Study on Phonon Dynamics in Single-Crystal Silicon and Argon,” ASME-JSME Thermal Engineering Summer Heat Transfer Conference, July 8-12, 2007, Vancouver (Canada).
- (10) 河内星子, 松本充弘, 「モデル準結晶のマイクロ熱伝導」, 第 44 回日本伝熱シンポジウム, 2007 年 5 月 23-25 日, 長崎.

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
松本 充弘 (MATSUMOTO MITSUHIRO)
京都大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号 10229578
- (2) 研究分担者
なし
- (3) 連携研究者
なし