

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 4 日現在

機関番号：12605

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14664

研究課題名（和文）熱電変換および新奇熱伝導材料における構造最適化手法の開発

研究課題名（英文）Development of structural optimization method for thermoelectric conversion and novel heat transfer materials

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）：ナノ構造化シリコン薄膜の最適な熱伝導率を探索する手法を開発した。この方法では、フォノンレイトレーシング法と焼きなまし法を組み合わせることで最適化を行う。具体的には、構造を徐々に変化させ、レイトレーシング法で求めた平均自由行程（熱伝導率の決定因子）がより最適に近い場合と、局所最適解を回避するため不利な構造の場合も確率に応じて採用する。開発した手法の妥当性は、力任せ探索によって得られた最適構造の結果と一致したことから、確認できた。また、焼きなまし法におけるパラメータが予測される最適構造に与える影響を検証することで、より効率的な最適化が実現できることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

シリコンは資源としての豊富さや無毒性などの長所を持つことから、様々なデバイスに利用されている。一方で、熱電変換材料としてはその高い熱伝導率に起因した低い変換効率が課題となっている。そうした中で、本研究では熱伝導率を下げる最適ナノ構造の探索方法を開発したため、デバイスの進歩に直接的に貢献することを期待する。同時に、熱電変換材料だけにとどまらず、開発した手法は様々な場面に際して応用可能であると考えられる。また、「ナノ構造中の熱輸送にとって決定的に重要な要素は何か」といった学術の基礎的理解を追求する研究を応用の観点から刺激する作用も期待できる。

研究成果の概要（英文）：An optimization method for thermal conductivity of nanostructured silicon thin films is developed. The optimization is realized by combining the phonon ray tracing and simulated annealing method. More specifically, the nanostructured thin films consisted of square lattices is gradually varied in each step. Phonon mean free path of each structure, which is the dominant factor for thermal conductivity, is evaluated by the ray tracing simulations. The new structure is accepted when its mean free path is closer to the optimum; if not, it is also accepted according to probability to avoid local optimum solution. The validity of the developed method is confirmed by comparing the results with those obtained by a brutal search. The influence of the parameters of the simulated annealing method on the predicted optimal structure is also verified, indicating that the parameter tuning leads to more efficient optimization.

研究分野：熱工学

キーワード：熱伝導率 シリコン薄膜 熱電変換 フォノン輸送

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

主に熱電変換材料を想定したマイクロ・ナノスケールの熱伝導の解析が実験、シミュレーションの両面で、近年に活発に行われている。これは熱電変換材料の効率の改善のためには、電気的特性を高めかつ熱伝導率を抑制する、という両立が困難な要請を満足する必要があり、それに対してナノ多結晶¹、ナノポーラス²、超格子³などといったナノ構造化が有用なためである。これはナノ構造化によって大量に生まれる界面によって熱伝導のキャリアであるフォノン(格子振動)の散乱を促進させることで熱伝導率が下がるためである。

こうしたデバイスの性能向上のための設計にはナノスケールにおける熱伝導現象の理解が重要である。そのため、フォノン輸送の解析技術の発展に関する研究がこれまで数多く行われており、複雑なナノ構造中における熱伝導現象の予測は可能になってきている⁴。例えばこれまで、Silicon on Insulator 基板から多様なナノ構造化薄膜が生成されており⁵⁻⁷、またそれらを対象とした熱伝導解析が行われている⁷⁻⁹。一方で現状では「性能が最大化するナノ構造はどういったものなのか」、「性能の限界はどれくらいなのか」などといった現実の材料にとって決定的に重要となる設計指針を示すまでには至っていない。

2. 研究の目的

熱電変換材料や新奇の熱伝導材料にとって最適なナノ構造を同定する枠組みを構築することを目的とした。具体的には、ナノ構造化シリコン薄膜を対象に、特に熱電変換材料としての最適化に重点を置き、フォノン輸送シミュレーション技術を利用した最適化方法を確立した。

3. 研究の方法

計算対象は、図(a)に示すような $n_x \times n_y$ 個の正方格子からなる2次元構造とし、その辺の長さ^{と厚みはすべて一定(=L₀)とした。各格子はそれぞれ固体または空隙の状態を持ち、これによりナノ構造を表現した。こうした構造が高温と低温の両方の熱浴に接続された状態を想定して熱伝導解析を行った。具体的には、ナノ構造における熱伝導率を支配する構造由来の平均自由行程 Λ_{bdy} を、レイトレーシング法^{10,11} によって求めた。この手法では、半導体における熱伝導の主要因であるフォノンの輸送を解析し、ナノ構造における透過確率を求めることで、 Λ_{bdy} を評価できる。}

このような格子からなるナノ構造に対して、焼きなまし法を利用した構造最適化方法を開発した。この方法では、構造を徐々に変化させ、その度に最適化対象である Λ_{bdy} をレイトレーシング法によって求める。 Λ_{bdy} が減少した場合や、また局所最適解に陥らないように、 Λ_{bdy} が増加した場合でも確率に依存して新構造を採用する。以上の操作を構造が収束するまで繰り返すことによって、最終的に最適構造が得られる。

4. 研究成果

上述のように開発した焼きなまし法を用いて、まず $n_x=n_y=5$ の25個の正方格子からなるナノ構造化薄膜の最適化を行った。この際、5つの独立したシミュレーションを行った。この結果、図(b)に示すナノ構造の Λ_{bdy} の収束過程のように、いずれの場合もほとんど同一の解に収束することが分かった。また、いずれの場合も5,000回以内の構造作成によって収束することが明らかになった。このことから、開発した焼きなまし法が、ナノ構造化シリコン薄膜の最適構造の予測のために有効であることが分かった。

また比較のため、25個の格子によって表現可能なすべてのナノ構造($2^{25}=33,554,432$ 通り)の熱伝導率を力任せ探索によって求めた。この結果を図(c)に示す。ここで、各構造の Λ_{bdy} だけではなく有効断面積 A_{eff} も同時に示している。さらにこの結果を用いて、焼きなまし法による探索と力任せ探索との比較を行った。図(d)に示す通り、力任せ法によって得られた確実な最適化構造を、焼きなまし法はほとんど正確に予測した。力任せ法に比べて焼きなまし法の探索数は1/1000以下であることから、シリコン薄膜の構造最適化において、焼きなまし法の有効性を明らかにした。

さらに、焼きなまし法におけるパラメータが最適構造の予測へ与える影響を検証した。特に、上述の不利な構造を採用する確率は、温度と呼ばれるパラメータによって決定されるため、その影響に焦点を当てた。ここで、温度が高いほど不利な構造であっても採用する確率が高い。一般に焼きなまし法では温度を徐々に低下させることで、構造を収束させる。その温度変化についての検証を行った結果、最適化の序盤は温度を急激に下げ、ある程度構造が絞られてから温度の変化を緩やかにする手法が有効であることが明らかになった。また、こうした傾向は、格子数がより多い薄膜構造においても同様に成り立つことがわかった。このことから、より大規模な構造においても同様のアプローチが有効であることが示唆された。

以上のように、本研究では、これまで行われていなかった熱電変換材料の構造最適化の枠組み自体の構築を行った。これまでの研究では、孔径、膜厚、狭長などといった、一部の構造特徴量の変化に対するナノ構造化薄膜の熱伝導率の応答を解析する、限定的な研究であったため、本研究成果は高いインパクトを持つと考える。また、本研究では特に熱電変換材料としてのナノ構

造化薄膜の最適化の解析を重点的に行ったが、開発した手法は熱レンズなどの他の目的への発展だけではなく、ナノ多結晶や埋め込みナノ結晶など、他のナノ構造の最適化解析への応用も可能である。また固体熱伝導に限らず、流路の最適化など、まったく異なる系への波及効果も望める。

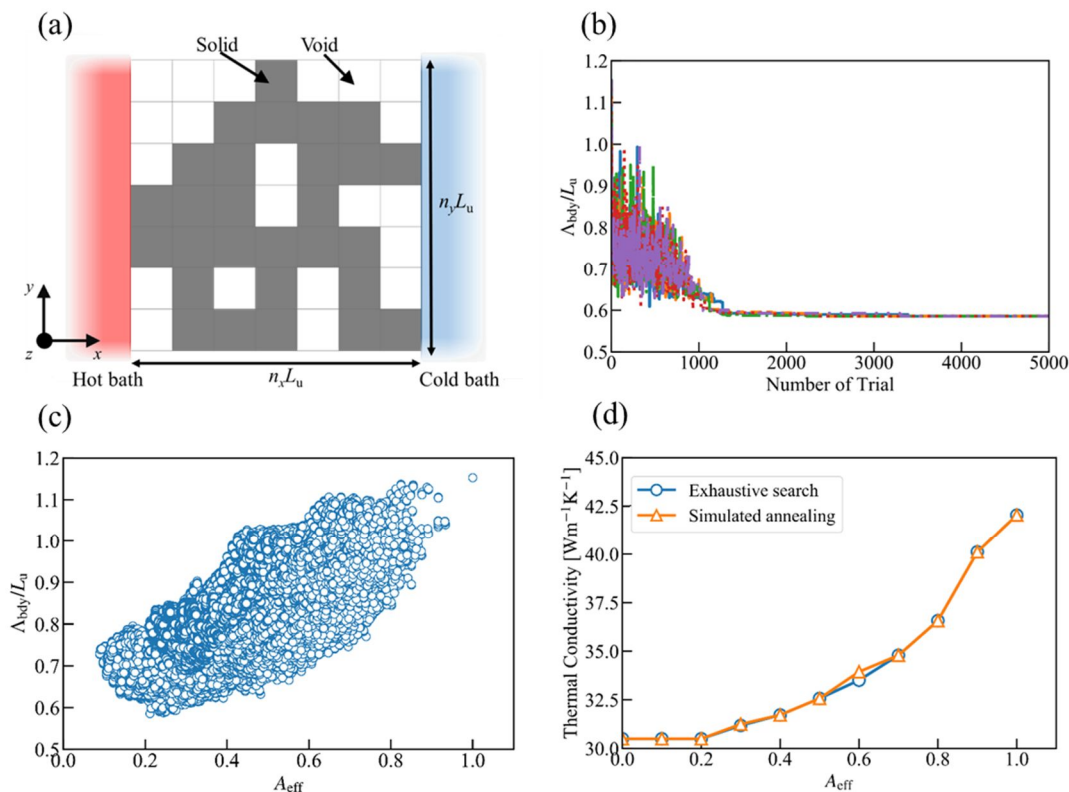


図 (a)焼きなまし法によって最適化を行う薄膜ナノ構造の模式図。(b) 焼きなまし法を用いて構造を最適化していく過程の Λ_{body} , 5つの独立した計算を表示。(c)力任せ法によって全探索した、すべてのパターンのナノ構造化薄膜の有効断面積 A_{eff} と Λ_{body} の関係。(d)力任せ法と焼きなまし法の比較。

<引用文献>

1. Y. Lan et al., Structure Study of Bulk Nanograined Thermoelectric Bismuth Antimony Telluride. Nano Letters, 9, 2009, 1419.
2. J. Tang et al., Holey silicon as an efficient thermoelectric material. Nano Letters, 10, 2010, 4279.
3. R. Venkatasubramanian et al., Thin-film thermoelectric devices with high room-temperature figures of merit. Nature 413, 2001, 597.
4. A. McGaughey et al., Phonon properties and thermal conductivity from first principles, lattice dynamics, and the Boltzmann transport equation, Journal of Applied Physics, 125, 2019, 011101.
5. J. Yu et al., Reduction of thermal conductivity in phononic nanomesh structures. Nature Nanotechnology, 5, 2010, 718.
6. M. Nomura et al., Impeded thermal transport in Si multiscale hierarchical architectures with phononic crystal nanostructures. Physical Review B, 91, 2015, 205422.
7. J. Maire et al., Thermal conductivity reduction in silicon fishbone nanowires. Scientific Reports, 8, 2018, 4452.
8. K. Parrish et al., Phonon-boundary scattering in nanoporous silicon films: Comparison of Monte Carlo techniques. Journal of Applied Physics 122, 2017, 125101.
9. A. Cocemasov et al., Phonon-engineered thermal transport in Si wires with constant and periodically modulated cross-sections: A crossover between nano- and microscale regimes. Applied Physics Letters, 107, 2015, 011904.
10. T. Hori et al., Effective phonon mean free path in polycrystalline nanostructures. Applied Physics Letters, 106, 2015, 171901.
11. T. Hori, Role of geometry and surface roughness in reducing phonon mean free path and lattice thermal conductivity of modulated nanowires. International Journal of Heat and Mass Transfer, 156, 2020, 119818.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 Hori Takuma	4. 巻 11
2. 論文標題 Structural optimization of silicon thin film for thermoelectric materials	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 22648
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-01855-6	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 Nagaya Hayato, Cho JunHee, Hori Takuma	4. 巻 130
2. 論文標題 Thermal conductivity of single-walled carbon nanotubes under torsional deformation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 215106 ~ 215106
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0073709	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7件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Takuma Hori
2. 発表標題 Prediction of phonon mean free path in polycrystalline nanostructures based on mean square displacement
3. 学会等名 7th Micro and Nano Flows Conference（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀 琢磨
2. 発表標題 ナノ構造化シリコン薄膜の熱電変換材料としての構造最適化
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀 琢磨, 谷口 竜聖, 苫米地 陸
2. 発表標題 ナノ構造化シリコンの伝熱特性の最適化に向けたフォノン輸送解析
3. 学会等名 熱工学コンファレンス2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀 琢磨, Dames Chris
2. 発表標題 ナノ多結晶におけるフォノンの平均自由行程の理論的予測
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hayato Nagaya, Junhee Cho, Takuma Hori
2. 発表標題 Influence of torsional deformation on thermal conductivity of single-walled carbon nanotube bundles
3. 学会等名 The 31st International Symposium on Transport Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuma Hori
2. 発表標題 Prediction of optimized silicon nanostructure as thermoelectrics by exhaustive search
3. 学会等名 The 31st International Symposium on Transport Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 堀 琢磨
2. 発表標題 フォノン輸送シミュレーション：熱伝導率の予測と構造の最適化
3. 学会等名 第6回フォノンエンジニアリング研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 堀琢磨	4. 発行年 2022年
2. 出版社 シーエムシー・リサーチ	5. 総ページ数 12
3. 書名 計算科学を活用した熱電変換材料の研究開発動向 第 編 第1章 モンテカルロシミュレーションによるナノ構造化材料の熱伝導解析	

〔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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	University of California, Berkeley		