

令和 3 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04879

研究課題名(和文)カーボンナノ材料を用いたフォノンダイオードの設計

研究課題名(英文) Design and Optimization of Phonon Thermal Diode using Carbon Nanomaterials

研究代表者

田中 之博 (TANAKA, Yukihiro)

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：00281791

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、我々が以前に提案したフォノンの整流機構に基づいて、熱流をある特定の方向に強く流すことのできる「フォノンダイオード」を開発した。具体的には、熱伝導性の極めて優れたグラフェンナノリボンに恣意的に三角形の構造欠陥を導入することによって、熱の非対称な伝導を発生させるデバイスを設計した。非平衡分子動力学シミュレーションを用いて、設計された熱ダイオードの熱整流効果を系統的に調べたが、期待される熱整流効果は得られなかった。しかし、三角形の構造欠陥にフォノンの経路を制限する線欠陥を加えたデバイスを設計したところ、低温領域(約50K)において、およそ23%の熱整流効率を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電気回路におけるダイオードの発見がエレクトロニクス産業の大きな発展に寄与したのと同様に、熱を一方に流すことのできる熱ダイオード(フォノンダイオード)の開発は、学術的にも工学的にも大変重要である。熱の整流デバイスは未だに開発されておらず、この研究の成果は、次世代のナノデバイスにおける熱の制御の新たな展開をもたらすと期待される。具体的には、ナノ電気力学系の駆動の際に発生する熱や雑音を素早く取り除くためのデバイスに応用が考えられるが、我々が得た熱整流効率(50Kで23%)では実用上は応用が難しく、更なる熱整流効率の向上が必要である。

研究成果の概要(英文)：In this research, based on the phonon rectification mechanism that we have proposed earlier, we have developed a "phonon diode" that can strongly flow heat in a specific direction. Specifically, we designed a device that generates asymmetric heat conduction by introducing a triangular structural defect into graphene nanoribbons, which have extremely excellent thermal conductivity. The thermal rectification effect of the designed thermal diode was systematically investigated using a non-equilibrium molecular dynamics (NEMD) simulation, but the expected thermal rectification effect was not obtained. However, when a device was designed with a triangular structural defect plus line defects limiting the phonon path, a thermal rectification efficiency of approximately 23% was obtained in the low temperature region (about 50K).

研究分野：固体物理学

キーワード：熱ダイオード 熱整流効果 フォノンダイオード 非平衡分子動力学法 非対称散乱体

### 1. 研究開始当初の背景

ナノスケールで駆動するデバイス素子は、そのほとんどがトンネル効果やスピン散乱などを利用した量子力学的干渉効果を活用する。よって、その機能を引き出すためには、この干渉を破壊する非弾性散乱、すなわち、ジュール熱等によるフォノン散乱を取り除く必要がある。このことを実現するためには、発生した熱を素早く動作回路上から空間的に離れた場所に逃がさなければならず、熱を特定の方向に流すことのできるデバイス、いわゆるフォノンダイオードの開発は不可欠である。

我々は、これまでの研究で、独自の発想による、一様なバルク固体に三角柱上の空洞を等間隔で周期的に配置した、音響波の整流機構を提案した。(図1) 幾何音響学近似に基づく、三角形の底辺側から入射した音響波の半分が入射した方向に反射され、三角形の散乱体を通る音響波のエネルギー透過率は 0.5 となる (I)。一方、頂点側から入射された音響波は、散乱体により斜め方向に反射されるが、すべての音響波は散乱体領域を通り抜けることができるため、そのエネルギー透過率は 1 となる (II)。音響波の波長は有限であるので、波動特有の回折および干渉効果を考慮しても、この非対称散乱体を用いた整流機構は有効であり、20%以上の効率を示すことを明らかにした。

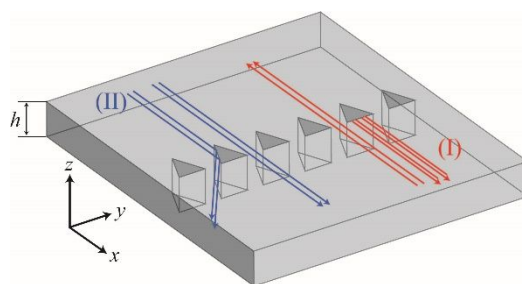


図1：弾性波整流器の概略図

### 2. 研究の目的

本研究は、以前提案された非対称散乱体を利用した弾性波に対する整流機構に基づいて、熱流をある特定の方向に強く流すことのできるフォノンダイオードを開発する。具体的には、グラフェンナノリボンに恣意的に欠陥を導入することによって、熱の非対称伝導を実現させるデバイスの設計を行う。これらのカーボンナノ材料に欠陥を導入すると、六角格子という結晶構造上の特異性から、原子レベルで非対称な散乱体を形成される。本研究では、この非対称な散乱体によって、カーボンナノ材料の熱伝導が整流効果を示すかどうかを検証する。カーボン材料は優れた熱伝導特性を示すため、ここで提案された整流機構が実現されれば、大きな整流効果を実現される。熱に対する整流デバイスは未だに開発されておらず、ここで成果は、次世代のナノデバイスにおける熱の制御の新たな展開をもたらすと期待される。

### 3. 研究の方法

(1) 非平衡分子動力学法を用いて、三角形型の構造欠陥をもつグラフェンナノリボンの熱伝導シミュレーションを行い、系を流れる熱流に対して整流効果の有無を調べた。カーボンナノ材料を流れる「熱流」に対する整流効果を調べるためには、非平衡分子動力学シミュレーションは不可欠である。非平衡分子動力学シミュレーションにはフリーかつオープンソースのソフトウェアである LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator) を使用した。当初、三角形型の構造欠陥をもつカーボンナノチューブの熱伝導シミュレーションを行う予定であったが、系の設定の容易さにより、グラフェンナノリボンに対象とする系に変更した。

(2) グラフェンは、炭素原子が  $sp^2$  結合によるハニカム構造を持った 2 次元物質であり、特に、細線のような形状のものをグラフェンナノリボン (GNR) という。長辺がアームチェア型のもは、原子を引き抜くことで三角形の欠陥が導入できる (図2)

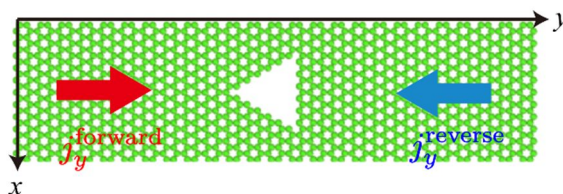


図2：三角形の欠陥を有するグラフェンナノリボンの概略図

(3) シミュレーションにおける各原子間にはたらくポテンシャルは、 Tersoff (1988) がダイヤモンドやグラファイトの弾性などを再現するために考案した(3体効果を含む)経験的なポテンシャルを、 Lindsay と Broid (2010) がグラフェンやカーボンナノチューブの熱伝導率を実験値に合うように再フィッティングしたものを用いた。このポテンシャルは、フォノン分散において、点付近の音響モードをよく再現し、熱伝導に大きな寄与をする音響フォノンの速度がより正確な値をとる。また、 Tersoff のオリジナルでは過大評価していた3次の非調和効果を抑えたものである。

(4) 非平衡分子動力学シミュレーションのフローチャートを図3に示す。具体的な手順としては、最初に原子を初期位置に配置し、欠陥を導入する場合は特定の原子を引き抜く。その後、能勢 - Hoover 熱浴によって温度一定のもとで系の平衡化を行う。系が平衡状態に達した後、能勢 - Hoover の温浴と冷浴を設置し定常状態になるまで時間発展させる。その後、原子の運動の時間発展データを取得し、温度分布や必要な物理量の計算をする。熱伝導率  $\kappa$  は、冷浴に流入したエネルギー  $\Delta E$  のデータとシミュレーション時間  $\Delta t$ 、および系の面積  $S$ 、系の長さ  $L$ 、熱浴間の温度差  $\Delta T$  を用いて、フーリエの法則

$$\kappa = \frac{1}{S} \frac{\Delta E}{\Delta t} \frac{L}{\Delta T}$$

より、算出する。最後に、熱整流効率  $\eta$  は、順方向の熱流束  $j_y^{\text{forward}}$  と逆方向の熱流束  $j_y^{\text{reverse}}$  の差より、

$$\eta(\%) = \frac{j_y^{\text{forward}} - j_y^{\text{reverse}}}{j_y^{\text{forward}}} \times 100$$

から算出する。

#### 4. 研究成果

(1) 三角形型の構造欠陥を持つ場合、以下の結果から、研究目的であった非対称散乱体(三角形型の構造欠陥)による熱流の整流効果は、どのような条件においても出現しないことが明らかとなった。

系の温度は 300 K とし、系の両端の温度差を 20 K としたとき、グラフェンナノリボンの幅に対して 1/2 の底辺をもつ三角形型の構造欠陥を導入しても、期待に反し、整流効果は 1% 以下となった。

さらに、三角形型の構造欠陥の底辺を大きくしても、熱伝導率そのものの大きさは小さくなるが、整流効率はほぼ 1% 以下となった。

また、底辺の長さを固定し(ナノリボンの幅の 1/2)、系の温度を 300 K から 100 K に下げた場合も、整流効率は 1% 以下と変化がなかった(図4)。

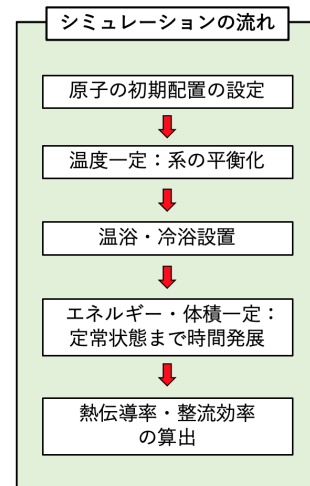


図3：非平衡分子動力学シミュレーションにおける熱伝導率計算のフローチャート

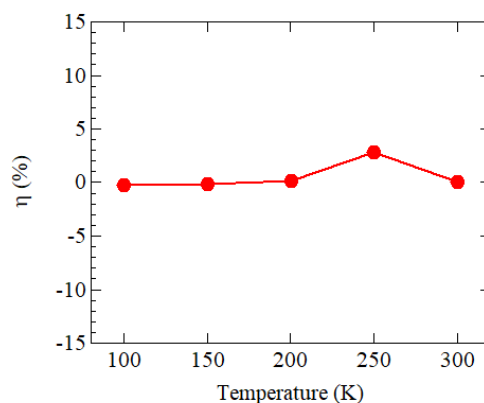


図4：三角形型の構造欠陥をもつグラフェンナノリボンの熱整流効率の温度依存性

(2) 三角形型の構造欠陥に、さらにその欠陥の底辺部分に棒状の構造欠陥を加えた場合(図5)以下に示す結果から、この系においては熱の整流効果が有効であることが示された。

我々は、三角形型の構造欠陥に、その欠陥の底辺部分に棒状の構造欠陥を加えた系を考案した。この棒状の欠陥は、三角形の両斜辺に平行に置かれたもので、頂点側から伝播したフォノンはその棒状の欠陥に沿ってガイドされ、底辺側から伝播したフォノンはその棒状欠陥によって散乱され、後方散乱を受けると期待される。

(1)と同様、系の温度は300Kとし、系の両端の温度差を20Kとしたとき、その系を流れる熱流の整流効率は7%まで上昇した。

さらに、系の温度を300Kから50Kまで減少させると、整流効率は23%まで上昇した。(図6)この結果は、熱が通るパスを棒状欠陥によって狭めることで、パスに沿ってのガイド効果と、反対側のフォノンに対する後方散乱の効果が増幅したことに起因すると考えられる。

また、系の両端の温度差を大きくすると整流効果が減少することがわかった。(図7)これは、温度差を大きくすることで、熱浴から供給されるフォノンが増加し、フォノン-フォノン散乱の頻度が増加するためであると考えられる。

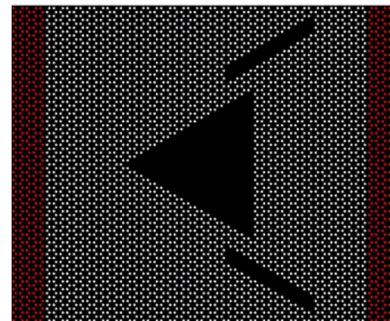


図5：三角形型の構造欠陥と線欠陥をもつグラフェンナノリボンの概略図

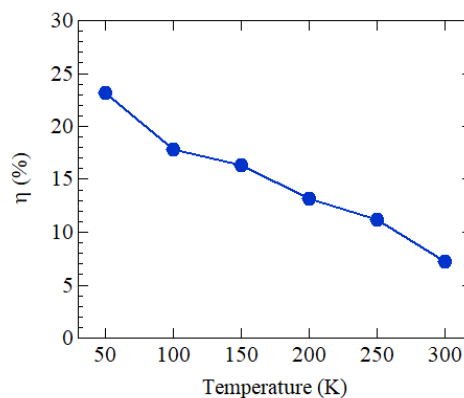


図6：三角形型の構造欠陥と線欠陥をもつグラフェンナノリボンの熱整流効率の温度依存性

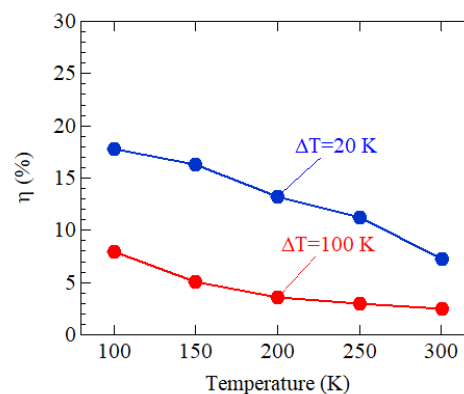


図7：系の両端の温度差を20Kにした場合と100Kにした場合の熱整流効率の温度依存性の比較

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 田中之博
2. 発表標題 磁気弾性体を用いた 2 次元フォノン結晶界面における界面弾性波の磁場制御
3. 学会等名 第40回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中之博
2. 発表標題 粘弾性散乱体の周期配列からなる 2 次元フォノン結晶における弾性波伝播
3. 学会等名 第39回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 平翼玖，田中之博
2. 発表標題 非対称欠陥を有するグラフェンリボンの熱整流効果の非平衡分子動力学法による数値解析
3. 学会等名 第56回応用物理学会北海道支部 / 第17回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平翼玖，田中之博
2. 発表標題 非対称欠陥を有するグラフェンナノリボンの熱整流効果の非平衡分子動力学法による数値解析
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------