

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：32689

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14197

研究課題名（和文）ひずみを利用した動的熱物性制御の可能性探索

研究課題名（英文）Control of thermal conductivity by using lattice strain

研究代表者

柏木 誠（KASHIWAGI, Makoto）

早稲田大学・ナノ・ライフ創新研究機構・次席研究員（研究院講師）

研究者番号：70825421

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本提案研究では、ひずみの印加による熱輸送制御技術の可能性について実験的、数値解析的両手法を用いて検討した。実験的にはスパッタリング成膜時の条件を制御することで膜内の応力を変化させ、その熱伝導率を評価した。その結果、ひずみ量の変化により熱伝導率が変化することが示された。また、数値解析的には、ひずみを加えた材料におけるフォノン熱輸送特性を、第一原理計算を用いて計算、評価した。その結果、格子定数の変化に伴い、高周波のフォノンが低周波にシフトすることでフォノン熱輸送特性が変化することが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果はひずみを用いたフォノン熱輸送特性制御の可能性を示したものである。この結果は、従来のフォノン・エンジニアリングにおける構造界面におけるフォノン散乱を利用した熱輸送制御とは異なり、結晶構造または原子配列構造に基づいたフォノン輸送特性の制御の可能性を示したものである。この成果は、新規な熱輸送特性制御の可能性を提示するだけでなく、従来のフォノン・エンジニアリングと組み合わせることで、さらなる熱輸送特性制御の可能性も提示するものであり、学術的な意義は大きい。また、本研究成果はより高度かつ複雑なサーマルマネジメントを可能とするものであり、その社会的意義も大きい。

研究成果の概要（英文）：In this study, the controlling thermal transport by applying strain was investigated using both experimental and numerical methods. Experimentally, the thermal conductivity was evaluated by changing the strain in the film by controlling the conditions during sputtering deposition. The results showed that the thermal conductivity changed with the amount of strain. Numerically, the phonon heat transport properties in the strained material were calculated and evaluated using first-principles calculations. The frequency shift of the high-frequency phonons to lower frequencies due to the change in the lattice constant results in a change in the heat transport properties of the phonons.

研究分野：熱工学

キーワード：フォノン熱輸送 格子ひずみ 熱計測

1. 研究開始当初の背景

近年、電子機器の高性能化・高集積化や省エネルギー化の要求の高まりなどから、熱マネジメントの要求が高まっている。この熱マネジメントにおいては、発熱部からの熱を高効率に排熱するというような単純なものだけではなく、一定の温度までは断熱し、所定の温度に達したら放熱して一定の温度を保つといった動的な熱輸送制御技術が要求されている。熱制御技術のひとつとして、近年、“フォノン・エンジニアリング”と呼ばれる技術の研究が盛んに行われている。このフォノン・エンジニアリングの研究においては、固体材料の熱輸送キャリアであるフォノンを、ナノポーラスやナノ結晶などのナノ構造の界面で散乱させることによって、固体材料の熱物性を任意に変化させることが可能である。この従来のフォノン・エンジニアリングにおいては、フォノン散乱を利用して熱物性を変化させているため、熱伝導率を低減させる方向の制御が基本であり、熱伝導率を向上させるといった熱物性制御は困難である。また、従来のフォノン・エンジニアリングでは、ナノ構造の形成により熱物性を変化させているため、その物性制御は静的なものに留まっている。したがって、任意のタイミングで熱伝導率を変化させるというような動的な熱物性制御は困難である。以上のような従来のフォノン・エンジニアリングにおける制御の限界から、新たな熱物性制御技術が求められている。

2. 研究の目的

前記の研究背景で述べたとおり、従来のフォノン・エンジニアリングによる熱輸送制御の限界を超えた新たな熱制御技術が求められている。本研究では、“ひずみ”に着目し、“ひずみ”を利用した新規熱輸送制御技術の可能性を探索した。“ひずみ”とは、固体材料に外力を加えた場合に生じる変形である。ここで、ひずみは“弾性ひずみ”と“塑性ひずみ”のふたつに分類できる。弾性ひずみは外力を除荷すると取り除かれるひずみであって、ミクロスコピックには“格子ひずみ”であり、結晶構造の変化である。一方で、“塑性ひずみ”は除荷しても取り除かれないひずみであって、ミクロスコピックには結晶構造における構造欠陥である“転位”の発生や移動によって生じる変形である。つまり、塑性ひずみが生じることで転位の増加やすべりによる転位密度の変化など、結晶構造の変化が生じる。ここで、固体材料の熱輸送キャリアである“フォノン”は格子振動を量子化したものであり、その輸送特性は結晶構造に大きく依存する。したがって、弾性ひずみ、塑性ひずみ、どちらのひずみによっても、そのフォノン熱輸送特性が変化する。さらに、特に“格子ひずみ”は除荷することで取り除かれることから、外力の印加、除去によって熱伝導率を動的に制御することが可能であると考えられる。しかしながら、ひずみが熱物性に与える影響は未だ明らかとなっていない点が多い。

以上を踏まえ、本研究では、固体材料における“ひずみ”がフォノン熱輸送に対して与える影響を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、(1) スパッタリング法を用いたひずみを有する無機材料薄膜の合成、(2) 合成したひずみを有する無機材料薄膜の熱伝導率計測、(3) 第一原理計算を用いたひずみのフォノン熱輸送への影響の見積もり、(4) 3ω 法を用いたひずみ熱伝導率同時計測法の検証を行った。

スパッタリング法は成膜材料であるターゲットと基板との間にプラズマを発生させ、プラズマ中のイオンをターゲットに衝突させることでターゲット中の原子を叩き出し、叩き出された原子(スパッタリング粒子)が基板上に堆積することで成膜する手法である。このスパッタリング法では、スパッタリング粒子は高いエネルギーを有するため、圧縮ひずみを有する膜を成膜することが可能である。また、スパッタリング時のガス圧や投入電力等のパラメータを制御することで、スパッタリング粒子のエネルギーを制御することが可能であり、スパッタリング粒子の持つエネルギーを制御することで膜中のひずみ量を制御することも可能である。本研究では、スパッタリング法を用いて、ひずみ量の異なる無機薄膜を作成し、それらの熱伝導率を評価することでひずみによる熱輸送制御可能性を探索する。また、この実験と並行して、第一原理計算を用いてひずみがフォノン熱輸送に与える影響を明らかとし、ひずみによる熱輸送特性制御の可能性を検証する。さらに、本研究では、 3ω 法を応用し、引っ張りや圧縮などの外力を印加しながらひずみと熱伝導率を同時に計測可能な新規熱物性計測手法を検討も併せて行った。

4. 研究成果

本研究で得られた成果について、以下に述べる。

(1) スパッタリング法を用いたひずみを有する無機材料薄膜の合成とその熱物性計測

図1にスパッタリング時のガス圧を変化させたときの酸化アルミニウム(Al_2O_3)の密度の変化を示す。図からもわかるとおり、スパッタリング時のガス圧が高くなることで密度が低下することがわかる。密度が変化するということは、単位体積あたりの原子数が変化しているということであり、すなわちそれは原子間の平均距離が変化していることを示している。したがって、これらのサンプルは、それぞれ異なるひずみ量を有することがわかる。

これらのサンプルについて、3法を用いて熱伝導率を計測した。その結果を図2に示す。これらの結果において、密度の上昇に伴って熱伝導率が上昇する結果が得られた。圧縮ひずみが加われば密度が上昇することを考えると、これらの結果から、圧縮方向のひずみが加わることで熱伝導率が上昇することが明らかとなった。また、本実験では約2倍程度の熱伝導率の変化が得られた。この結果はスパッタリングによって生じた静的ひずみによるものであり、外力を印加すれば、熱伝導率の変化範囲をさらに広げられることが期待できると考えている。

(2) 第一原理計算によるひずみの熱輸送への影響の見積もり

図3はひずみが熱伝導率に与える影響、図4はひずみによってフォノン状態密度がどのように変化したかを示している。この計算においてはシリコン(Si)を対象とし、格子定数を10%増加させた場合(引張ひずみ)について計算を行った。図3の結果に示すとおり、引張ひずみを加えることで熱伝導率が大幅に低下している。ひずみを加えていない場合の熱伝導率が $141 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ であったのに対し、10%のひずみを加えると熱伝導率が $47 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ まで低下し、その変化率は約3倍である。この熱伝導率の変化について、図4に示すフォノンの状態密度の変化から考える。この結果において、引張りひずみが入ることで、特に高周波のフォノンの状態密度が低周波側にシフトしていることがわかる。このシフトは、引張りひずみが生じたことで原子間距離が伸びたことで、特に高周波のフォノンの振動モードが低周波の振動モードにシフトしたためであると考えられる。したがって、原子間距離が戻れば、この状態密度のシフトは戻ると考えられる。つまり、これらの結果は、ひずみを用いた可逆的な熱輸送特性制御の可能性を示している。

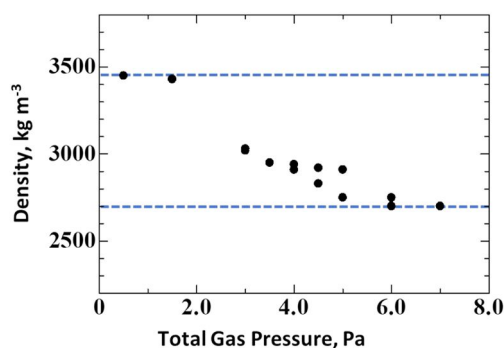


図1 スパッタリング時ガス圧の変化による密度変化

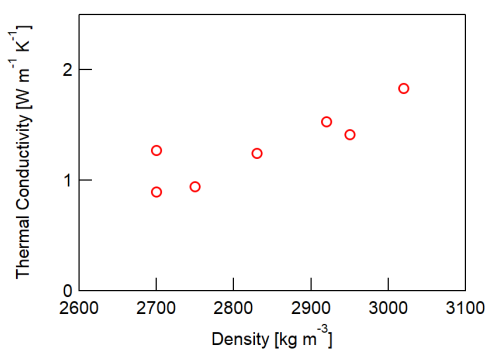


図2 密度が異なるサンプルの熱伝導率

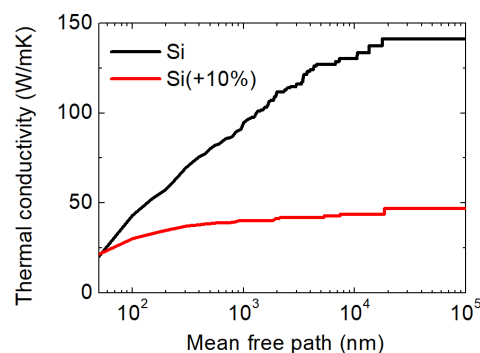


図3 ひずみによる熱伝導率変化

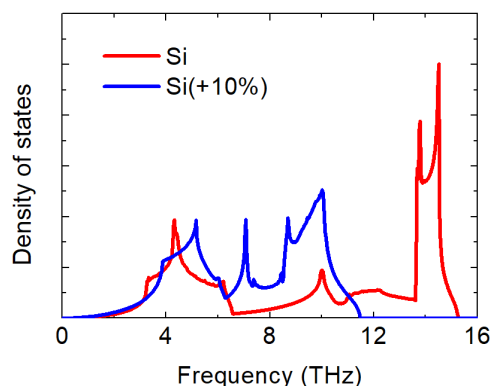


図4 ひずみによるフォノン状態密度の変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 Makoto Kashiwagi, Naoki Noda, Yuichiro Yamashita, Takashi Yagi, Yuki Oguchi, Naoyuki Taketoshi, Yuzo Shigesato |
| 2. 発表標題 Temperature dependence of thermal conductivity of amorphous aluminum oxide thin films with different densities |
| 3. 学会等名 MRM2023/IUMRS-ICA2023 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 N. Noda, C. Abe, M. Kashiwagi, Y. Yamashita, T. Yagi, Y. Oguchi, N. Taketoshi, Y. Shigesato |
| 2. 発表標題 The effect of film structure on the thermal conductivity for Al ₂ O ₃ thin films prepared by sputtering method |
| 3. 学会等名 The 13th Asian Thermophysical Properties Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2022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 |
|---------|---------|