

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656428

研究課題名（和文）ナノポーラス材料の界面熱輸送の研究

研究課題名（英文）Study of interfacial thermal transport in nanoporous materials

研究代表者

酒井 明 (SAKAI AKIRA)

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80143543

研究成果の概要（和文）：

本研究の主旨は、液体 He/ナノポーラス金属界面におけるフォノン反射測定による界面熱抵抗評価にある。研究では実験装置にトラブルが多発し、さらに研究室移動、He 回収系の問題等のため、研究未了の点が多く残されている。関連研究の成果は、以下のとおりである。(i) 破断シミュレーションにより Mg・Fe 単原子接点形成の結晶方位依存性を解明した。(ii) Ni の伝導度ヒストグラムを測定し、単原子ピークが約 50K で消失することを見出した。

研究成果の概要（英文）：

In this study, we tried to investigate the thermal boundary resistance of nanoporous metals by measuring the phonon reflection at the nanoporous-metal/liquid-He interface. The project encountered unexpected troubles such as malfunctions of the cryostat, relocations of the laboratory, and the precedence problem of the He recovery system, etc, and the many topics have been left unclarified. We, however, obtained some results from related researches. (1) we have carried out break simulations and studied the formation of the single-atom contact of Mg and Fe. (2) we have measured the conductance histogram of Ni contacts and found that the single-atom peak disappears around 50K.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：ナノ材料物性

科研費の分科・細目：材料工学・構造・機能材料

キーワード：ナノ構造

1. 研究開始当初の背景

ナノ材料については、その電気的特性に関する研究が多く行なわれているが、ナノスケール熱輸送に関しては理解されていない点が多く残されている。ナノワイヤー等における量子熱輸送の研究が主に理論主導で進められているものの、実験研究は数が少なく、今後より多くの実験データの蓄積が求められている。ナノ材料では界面熱抵抗が果たす

役割が大きく、特にナノポーラス材料では、熱輸送は界面熱抵抗に支配されている。本研究は液体ヘリウムのユニークな特性を活用して界面熱抵抗を探索するものであり、研究結果はナノポーラス材料の物性評価にとどまらず、ナノスケール熱輸送の研究を進展させる端緒になることが期待される。

2. 研究の目的

本研究では界面熱抵抗 (Kapitza 抵抗) に絞りを絞る, ナノポーラス材料の界面熱抵抗, 具体的には熱フォノンの界面反射, を実験的に明らかにしてゆく. 本研究の最大の特徴は, ナノポーラス構造に対する理想的な熱接触媒体として超流動ヘリウムを利用することにある. ナノポーラス金属および Si 等を超流動ヘリウムと接触させ, フォノン反射測定法を用いてナノポーラス材料の界面熱抵抗の特性を解明してゆく

3. 研究の方法

本研究では, Si 基板上にナノポーラス金属膜を作製し, これを液体ヘリウムに接触させる. Si 基板裏面にフォノン発生・検出源を取り付け, 発生したフォノンがナノポーラス金属膜と液体ヘリウムとの界面で反射して戻ってくる強度を測定する. これにより熱フォノンの界面反射率が求められ, 界面熱抵抗が評価される. この手法は Kapitza 抵抗の実験に古くから利用されてきたが, ナノ材料への応用は今回が初めての試みである. 粘性が無く内部に温度勾配が発生しない超流動ヘリウムはナノ細孔内に浸透して材料の全面積と接触するため, ナノポーラス材料の界面熱抵抗を測定するためには最適の媒体である. またフォノン反射に依らない温度差測定による界面熱抵抗測定も試みる.

4. 研究成果

界面熱抵抗測定用クライオスタットと周辺設備の導入から研究をスタートさせた. フォノン発生/検出に超伝導 Al を使用する都合上, 試料室は Al の超伝導転移温度である 1.2K 以下に冷却する必要がある. ここでは液体 He3 を使用せずに, 液体ヘリウム溜めの排気口にオリフィスを設けて超流動フィルムによる熱損失を防止し, 大きな排気容量のポンプを用いて液体 He4 を減圧する方式で 1K の実現を目指すこととした. しかしながらクライオスタットの設計に時間を要し, またクライオスタットの電流導入端子が溶接時にリークを起こすなどのトラブルが多発して, クライオスタットの完成が大幅に遅れることとなった. また研究室の移転や液体ヘリウムの実験系を他の研究に使用する必要が生じたこと等により, 実験は未了の点が多く残されている. 一方, 関連した原子サイズ系の研究では, 以下の成果を得ている.

(1) Au や Al などの FCC 典型金属は, 室温においても液体ヘリウム温度においても, 破断接合法により単原子接点に至る原子サイズ接点を形成することができる. しかし Mg の破断接合の場合には, 液体ヘリウム温度では単原子接点が形成されるのに対して, 室温ではコンダクタンスが 4G0 以下の微小原子サイ

ズ接点は形成されない. 一方, 高延性 Mg 合金の破断接合では, 室温でも 4G0 以下の接点が形成されることから, 室温で純 Mg の単原子接点が観測されない原因が, 破断接合における接点の変形過程にあることが推定される. そこで分子動力学 (MD) シミュレーションを用いて Mg ナノワイヤーの破断過程を調べることを行った. 最初に図 1 の左端に示すような Mg 単結晶のナノワイヤーを作成し, 原子位置を固定した上下の板を 2.0 m/s の速度で引き離してナノワイヤーの引っ張り変形を行った, ナノワイヤーの結晶方位は [0001], [01-10] および [11-20] の 3 方向を採用し, 室温および液体ヘリウム温度でシミュレーションを行った. 使用したポテンシャルは TB ポテンシャルである.

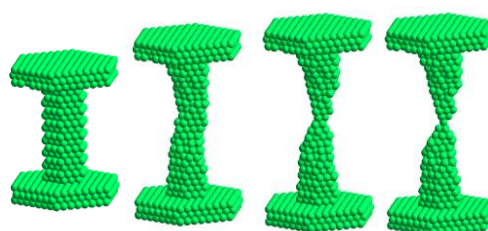


図 1. Mg ナノワイヤーの破断過程.

図 1 に見られるように, ナノワイヤーはネッキング変形して破断に至っている. 液体ヘリウム温度における [0001] ナノワイヤーの引っ張り変形では, ネック部に単原子接点が形成される頻度が高いが, 室温における [01-10] ナノワイヤーでは 5 角形の断面形状を示す icosahedral ナノワイヤーが高い確率で形成され, このために単原子接点に至らずに破断することが明らかになった.

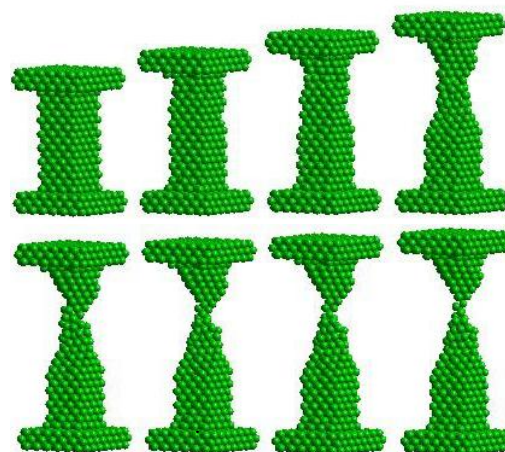


図 2. Fe[110] ナノワイヤーの破断過程.

また BCC 結晶である Fe の場合には, 低温ではパイエルス機構のために降伏応力が高くなることが知られている. このことから 4K の低温における接点の破断過程では, 単一す

べりによるスライド機構が働くのではないかと推定される。しかしシミュレーションの結果は図2に示すように多重すべりによるネッキングを示しており、ナノワイヤーの場合には、その低温破断過程は、バルク結晶の低温変形特性とかなり異なることが示唆されている。

(2) Ni 原子サイズ接点のコンダクタンスヒストグラムは、液体ヘリウム温度では1G0と2G0の間に単原子接点に対応するやや幅広いピークを示すことが多くの実験により確かめられている。しかし室温ではヒストグラムは平坦であり、ピーク構造は観察されない。それでは、どの程度の温度になると単原子ピークが見られなくなるのか、この点を解明するために、4K から室温にわたる温度範囲で Ni 原子サイズ接点のコンダクタンスヒストグラムの観測を行った。実験には MCBJ を使用し、室温から液体窒素温度までは UHV-MCBJ 装置を、また 60K から 4K までは低温 MCBJ 装置をそれぞれ使用した。

図3に20Kおよび60Kにおけるコンダクタンスヒストグラムを示す。図に見られるように、60K では60K で観測されている Ni の単原子ピークは観測されず、ピークの消失が20K と 60K の間で起きていることが分かる。より細かい温度範囲で行われた実験結果は、単原子ピークが50K 付近で消失していることを示唆している。Ni 原子サイズ接点の形成については、いくつかの異なる温度で MD シミュレーションが行われているが、160K 以下の温度域では結果が得られていない。実験からは、単原子接点の寿命ではなくその生成確率が温度の上昇とともに減少することが示唆されている。しかし 50K のような低温で Ni 接点の破断過程が大きく変化することは考え難く、Ni 単原子ピークが昇温により消失する理由は、まだ解明されていない。

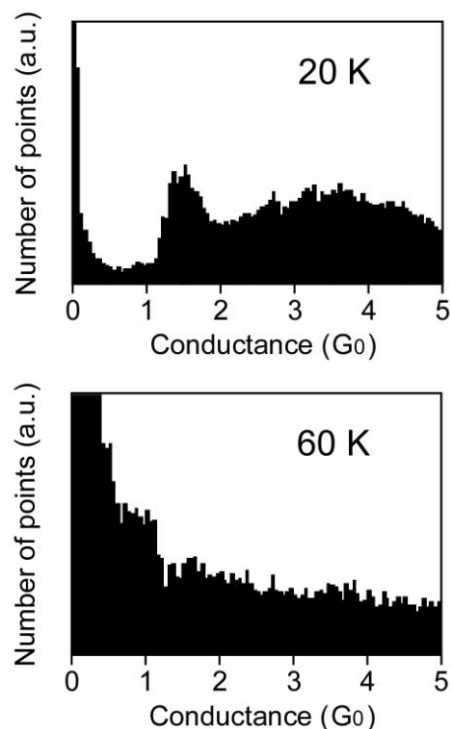


図3. Ni のコンダクタンスヒストグラム.

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) Y. Moriguchi, K. Yamauchi, S. Kurokawa, and A. Sakai

"Conductance of atom-sized contacts of transition metals at room temperature"
Surface Science 606, 928-932 (2012).

(査読有)

(2) A. Takahashi, S. Kurokawa and A. Sakai
"Formation of atom-sized contacts of Mg and Mg alloys at room temperature"

Physica Status Solidi A 209, 2151-2156 (2012). (査読有)

doi: 10.1002/pssa.201228190

[学会発表] (計3件)

① 高橋篤史, 黒川 修, 酒井 明

"HCP ナノワイヤの引張変形挙動と単原子接点形成"

第32回日本表面科学会学術講演会
2012年11月22日(仙台市)

② 森口裕磨, 黒川 修, 酒井 明

"Ni 単原子接点コンダクタンスの温度依存性"

第32回日本表面科学会学術講演会
2012年11月21日(仙台市)

③ 高橋篤史, 黒川 修, 酒井 明

“Mg ナノワイヤの破断過程”
日本物理学会 2012 年秋季大会
2012 年 9 月 20 日 (横浜市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

酒井 明 (SAKAI AKIRA)

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80143543

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし