

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24656029

研究課題名(和文) ナノワイヤの熱伝導理論

研究課題名(英文) Theory of thermal transport in nanowires

研究代表者

小林 伸彦 (KOBAYASHI, Nobuhiko)

筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号：10311341

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：原子レベルからフォノン熱伝導解析を行うための方法論を開発し、ナノワイヤー、ナノチューブ等に対して適用した。詳細な原子の振動からフォノン伝導を解析した。それにより原子レベルから、物質の熱伝導度の温度、断面積、構成原子依存性とそれら因子間の関係を解明した。またフォノン間散乱効果を取り入れた計算法を開発し、フォノン寿命、フォノン平均自由行程の解析も行った。

研究成果の概要(英文)：We have developed a method of calculating thermal transport properties using non-equilibrium Green's function techniques from atomistic levels. We applied the method to analysis of transport properties of nanowires and nanotubes. We have elucidated the temperature dependence and the crossover of thermal conductance from the usual behavior proportional to the cross-sectional area at room temperature to the universal quantized behavior at low temperature. We also find that this crossover of thermal conductance occurs smoothly for the quasi-one-dimensional materials. We also analyzed the phonon lifetime due to phonon-phonon scatterings by the anharmonic terms of interatomic forces.

研究分野：計算物理

キーワード：熱伝導 ナノワイヤ 理論

### 1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクス分野において続いてきた素子の微細化およびその集積化において重要な問題の一つに発熱問題がある。高速動作させることで消費電力は増大し、集積化することで単位面積当たりの発熱量はさらに増大する。そのため、電子素子の高性能化による計算性能の向上が困難となり、放熱性能に優れた素子の開発が更なる高性能化に向けて求められている。放熱性能の向上には高い熱伝導率の物質で構成する事や精密な放熱設計に基づいた構造作製が重要であるが、微細化によってナノメートルサイズになった物質の熱伝導率は、巨視的なバルクの熱伝導率とは異なるものである。例えば、シリコンナノワイヤの熱伝導率がワイヤの直径に依存して変化することが明らかにされている。そのため、原子レベルから熱伝導特性を解明できる量子論を用いた精密理論を整備することが急務となっていた。

### 2. 研究の目的

ナノスケールでの熱伝導率はバルクの熱伝導率とは異なり、その微細な形状や構成物質などに大きく依存する。そのためバルクに対するように、熱伝導率と物質のサイズから熱伝導率を見積もることができず、理論計算による原子レベルからの熱伝導研究が重要な役割を担っている。そこで、原子レベルからのフォノン熱伝導解析を行うための方法論を開発し、ナノワイヤ、ナノチューブ、物質界面等に対して適用する。詳細な原子の振動からフォノン伝導を計算する。それにより原子レベルから、物質の熱伝導度の温度、断面積、構成原子依存性とそれら因子間の関係を解明する。またフォノン間散乱効果を取り入れた計算法を開発し、フォノン寿命、フォノン平均自由行程を明らかにする。

### 3. 研究の方法

非平衡グリーン関数法を用いたフォノン熱伝導解析を行うための方法論を開発し、ナノワイヤ、ナノチューブ等に対して適用する。系のハミルトニアンを、原子  $i$  の質量  $M_i$ 、平衡位置からの変位演算子  $u_{i\alpha}(t)$  を用いて

$$H = \sum_{\substack{i \in \text{sys} \\ \alpha = x, y, z}} \frac{1}{2M_i} p_{i\alpha}^2(t) + \frac{1}{2} \sum_{\substack{i, j \in \text{sys} \\ \alpha, \beta = x, y, z}} u_{i\alpha}(t) K_{i\alpha, j\beta} u_{j\beta}(t)$$

と表し、左(右)のリードと散乱領域に分ける。散乱領域へ流れる熱流  $J_{th}$  は

$$J_{th} = \int_0^\infty d\omega \frac{\hbar\omega}{2\pi} [n_{BE}(\omega, T_L) - n_{BE}(\omega, T_R)] \zeta(\omega)$$

となる。  $n_{BE}(\omega, T_{L(R)})$  はボーズ・アインシュタイン分布関数

$$n_{BE}(\omega, T) = \frac{1}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1}$$

であり、左(右)のリードの温度  $T_{L(R)}$  の平衡状態における角振動数  $\omega$  のフォノン分布を表す。フォノンの透過関数  $\zeta(\omega)$  は

$$\zeta(\omega) = \text{Tr}[\Gamma_L(\omega) G^r(\omega) \Gamma_R(\omega) G^a(\omega)]$$

で与えられ、散乱領域における遅延(先進)グリーン関数  $G^{r(a)}(\omega)$  は

$$G^{r/a}(\omega) = [\omega^2 M - K - \Sigma_L^{r/a} - \Sigma_R^{r/a}]^{-1}$$

で与えられる。  $M$  は質量を表す対角行列であり、  $\Sigma_{L(R)}^{r(a)}(\omega)$  は左(右)リードが散乱領域と結合したときの遅延(先進)自己エネルギーである。これを用いて  $\Gamma_{L(R)}(\omega)$  は

$$\Gamma_{L(R)}(\omega) = i[\Sigma_{L(R)}^r(\omega) - \Sigma_{L(R)}^a(\omega)]$$

である。動力学行列  $K$  は

$$K_{i\alpha, j\beta} = \frac{\partial^2 E}{\partial r_{i\alpha} \partial r_{j\beta}} = -\frac{[F_{i\alpha}(+\Delta R_{j\beta}) - F_{i\alpha}(-\Delta R_{j\beta})]}{2\Delta R_{j\beta}}$$

により求められる。  $r_{i\alpha}$ 、  $\Delta R_{i\alpha}$ 、  $F_{i\alpha}$  は原子  $i$  の座標、変位量、働く力の  $\alpha$  成分である。熱伝導率は無限小の温度差を与えた時に流れる熱流で定義され、上記より

$$G_{th}(T) = \frac{dJ_{th}}{dT} = \int_0^\infty \frac{d\omega}{2\pi} \hbar\omega \zeta(\omega) \frac{\partial n_{BE}(\omega, T)}{\partial T}$$

となる。これらをコンピュータ上で数値シミュレーションを行うプログラムを開発し、熱伝導特性を解析する。

### 4. 研究成果

ナノワイヤのフォノン分散関係を解析し、非平衡グリーン関数を用いて伝導特性を明らかにした。図1にシリコンナノワイヤ(SiNW)、ダイヤモンドナノワイヤ(DNW)、カーボンナノチューブ(CNT)のフォノン分散関係を示す。0Kでは熱を運べるフォノンが存在しないため、熱伝導率はゼロである。温度の上昇により、エネルギーの高いフォノンが熱を伝搬出来るようになるため熱伝導率は上昇し、高温で飽和する。SiNW, DNW, CNTのフォノンのエネルギーの最大値は70, 180, 210meVであり、700, 1800, 2100K程で熱伝導率は飽和する。このため高温における熱伝導率は炭素原子で構成されるナノワイヤ、ナノチューブの方が非常に高くなる傾向がある。

ナノワイヤなど2次元方向にナノレベルで閉じ込められ1次元方向の自由度のみを持つ系では、電気伝導が量子化されてその微分コンダクタンスが閉じ込めの強さに対して  $2e^2/h$  を単位とした階段状の振る舞いをする事が知られている。量子化コンダクタンスと呼ばれるこの現象は電気伝導におい

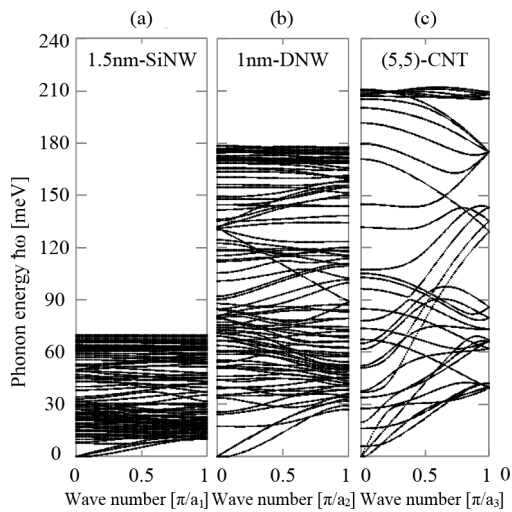


図1 (a)シリコンナノワイヤ(b)ダイヤモンドナノワイヤ(c)カーボンナノチューブのフォノン分散関係。

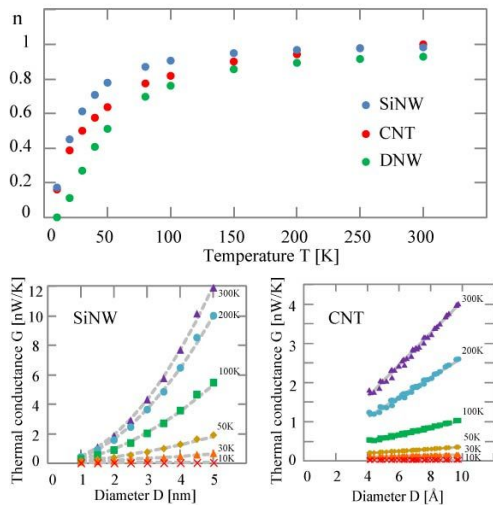


図2 (上図) SiNW, CNT, DNW に対する熱伝導度  $G \propto N^n$  の指数  $n$ 。(下図) SiNW と CNT の熱伝導度の直径依存性。

て1次元の状態密度と1次元の速度が打ち消しあうために起こるもので、特に低温においてはモード数が明瞭に分離されて観測される現象である。これは同様にフォノン伝導においても起こる現象である。2次元方向に閉じ込められ1次元方向の自由度モードのみを持つ細いナノワイヤでは、その熱伝導度は低温において  $\pi^2 k_B^2 T / 3h$  を単位としたフォノンモード数が明瞭に分離され、低エネルギーでの音響フォノンモード数に対応する量子化熱伝導が現れることになる。通常バルク構造では低いエネルギー領域に3つの音響フォノンモードがあるのに対し、ナノワイヤ構造では4つのフォノンモード(2つのTAモード、LAモード、およびTWモード)がある。従ってその熱伝導度は

$$G_{ph}(T) = 4 \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3 h}$$

に量子化される。これは極低温では熱伝導度はワイヤの直径には依存しないことを示している。一方、ナノワイヤの熱伝導度は常温では断面の原子数  $N$  に比例した熱伝導度を示す。そこで温度変化に伴い熱伝導度が量子化熱コンダクタンスに如何に変遷していくのか、その振る舞いをみるために  $G(T) \propto N^n$  と置き、SiNW、CNT、DNW に対してその指数  $n$  の温度依存性を計算したものが図2である。常温 300K でほぼ  $n=1$  を示す通常の断面に比例する熱伝導度は、低温に移るにつれて  $n=0$  の普遍的(ユニバーサル)な量子化熱伝導へ移り変わる。興味深いことに、ナノワイヤの種類に応じてそれぞれ変化する温度領域が異なる。SiNW では 100K ほどから変遷が起こり  $n=0$  に近づくが、炭素原子から形成される CNT や DNW では室温付近からすでに移り変わりが始まることがわかった。さらに、フォノン間散乱効果を取り入れた計算法を開発し、フォノン寿命、フォノン平均自由行程を明らかにした。

## 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8件)

N.Kobayashi, K.Yamamoto, H.Ishii, K.Hirose, Atomistic Calculations of Heat transport in Silicon Crystal, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol, 12 154-156 (2014). DOI: 10.1380/ejssnt.2014.154

K.Hirose, K.Kobayashi, M.Shimono, H.Ishii, N.Kobayashi, Electric and Thermal Transport Calculations through Nanometer-Size Interface and Applications toward High-Efficient Thermoelectric Energy Conversion, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. 12 115-118 (2014). DOI: 10.1380/ejssnt.2014.115

K.Yamamoto, H.Ishii, N.Kobayashi, K.Hirose, Thermal conductance calculations of silicon nanowires: comparison with diamond nanowires, Nano. Res. Lett. 8 (2013) 256 (1-7). DOI:10.1186/1556-276X-8-256

(学会発表)(計14件)

N.Kobayashi, K.Yamamoto, H.Ishii, K.Hirose, Atomistic calculations of thermal transport in nanosystems, ICN+T2014, July 20-25, 2014, Colorado USA.

N.Kobayashi, K.Yamamoto, H.Ishii, K.Hirose, Atomistic Calculations of Heat Transport in Nanoscale Systems, ACSIN12, Nov.4-8, 2013, International Congress Center, Tsukuba Ibaraki.

小林伸彦、ナノワイヤの熱伝導理論、電気学会ナノエレクトロニクス集積化・応用技術調査専門委員会ナノデバイスの熱管理工学（招待講演）2012年11月30日、早稲田大学（東京）

〔図書〕（計2件）

K.Hirose, N.Kobayashi, Quantum Transport Calculations for Nanosystems, (Pan Stanford Publishing, 2014) 523

広瀬賢二、小林伸彦、ナノワイヤ最新技術の基礎と応用展開第 編 7 章熱伝導・熱電性能、(CMC 出版、2013)p174-p187

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~cmslab/>

## 6．研究組織

### (1)研究代表者

小林伸彦 (KOBAYASHI Nobuhiko)  
筑波大学・数理物質系・准教授  
研究者番号：10311341

### (2)研究分担者

小林一昭 (KOBAYASHI Kazuaki)  
物質材料研究機構・  
理論計算科学ユニット・主幹研究員  
研究者番号：00354150

### (3)連携研究者

石井宏幸 (ISHII Hiroyuki)  
筑波大学・数理物質系・助教  
研究者番号：00585127