

TSUBAME 共同利用 平成 27 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 ナノ構造界面における熱輸送の分子シミュレーション
英文: Characterization of thermal transport at nanostructure interface利用課題責任者 塩見淳一郎
Junichiro Shiomi所属 東京大学 工学系研究科 機械工学専攻
Affiliation Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo
URL www.phonon.t.u-tokyo.ac.jp

界面におけるエネルギー散逸はデバイス特性を決定するため、界面熱輸送解析は重要な研究トピックである。特にナノ構造界面における熱輸送は界面を構成する材料のバルク物性に加えて、界面および近傍における原子間の結合状態などの界面状態に強く支配される。本研究ではナノ構造界面において、界面状態が熱輸送に与える影響と、界面応力が系全体の熱伝導特性に与える影響を検証した。

Since the energy dissipation at interface determines device performance, interfacial thermal transport holds its importance. In particular, thermal transport at nanostructure interface strongly depends on not only bulk properties of materials consisting the interface, but also local atomic configuration and bonding. In this work, we have evaluated the influence of interface state at nanostructure on heat conduction in overall material, and investigated the effect of external mechanical force field to modulation of heat conduction by atomistic Green's function method.

Keywords: Phonon transport, interface, local strain, heat conduction modulation, Green's function

背景と目的

界面におけるエネルギー散逸はデバイス特性を決定するため、界面熱輸送解析は重要な研究トピックである。界面熱輸送制御では、放熱や断熱デバイスのための低(または高)界面熱抵抗に加えて、界面熱抵抗の値を外力によってフレキシブルに変えることが可能な熱スイッチ機能も近年の熱マネジメントにおいて求められる要求機能である。熱流束のスイッチングを実現するアプローチとして接触・非接触による熱流制御や構造相転移現象の利用が一般的に考えられている。ただし接触・非接触では、これを実現する機械的な機構のスケール限界や、メンテナンスの必要性が課題であり、構造相転移現象を利用した熱スイッチ機構では、温度領域が限定されることと、熱流のオンオフ比が比較的小さいことが課題である。以上のように、熱スイッチの工学的ニーズはあるものの、現状では高スケーラビリティ・高オンオフ比を有し、幅広い温度領域で稼働する熱スイッチ機構の候補材料はほとんどないといえる。

これら熱スイッチ機構に加えて近年注目されているアプローチの一つにひずみ印加による空間的な熱物性

変調がある。特に弾性ひずみは可逆的性質を担保したプロセスであることに加え、マクロスケール材料とは異なり、ナノ材料では大きな弾性ひずみを印加できる。候補ナノ材料としてはグラフェンや二硫化モリブレン(MoS₂)などの二次元材料やナノチューブなどの一次元材料があり、グラフェンを対象とした理論・数値計算では 15-20%程度の弾性ひずみを印加可能とされており、対応する熱伝導率変化も 10-70%と極めて大きい[1,2]。また熱伝導だけではなく、MoS₂に関する理論研究では局所ひずみによって材料全体の電気的特性を大幅に変えられることが示唆されている[3]。

MoS₂ 材料の局所ひずみと電気的特性の変調のアナロジーを熱伝導に適用すれば、局所ひずみが印加された微小領域の熱(フォノン)物性を変化させることで、系全体の熱伝導を変調することも理論的には可能である。そこで本研究ではグラフェン・ナノリボンを対象とし、局所ひずみがフォノン輸送に与える影響を分子シミュレーションを用いて、ひずみ印加がフォノン輸送特性に与える影響を検証し、局所ひずみによる熱伝導変調材料の設計指針を得ることを目的とする。

概要

本研究では固体-固体間と固体-液体間を含む系の熱輸送特性に関する数値計算を多角的に行うことを目的としている。特に、熱電変換や沸騰・凍結など界面の微視的な熱輸送物性が系全体の伝熱に大きく影響する現象を対象に、第一原理計算、分子動力学計算、格子動力学計算、モンテカルロ計算、連続体計算を適材適所に組み合わせながら、マルチスケール熱・物質輸送解析を実施する。

固体-固体間界面では、近年熱電変換の分野で成功を収めているナノ構造体が母材に埋め込まれた系に対して、密度汎関数法と格子動力学法、分子動力学法を用いて、界面フォノンモード解析を行う。これにより得られる界面フォノン透過関数を入力としたモンテカルロ計算を実施し、ナノ構造化バルク熱電変換材料の熱伝導特性を評価する。次に固体-液体間界面では、沸騰初期における気泡核生成メカニズムの解明に向けて、表面粗さや濡れ性などの表面物性が気泡核生成に与える影響を分子動力学法を用いて評価する。さらに、分子動力学計算結果をフェーズ・フィールド法に組み込み、沸騰のシミュレーションを行うことで、ナノ構造界面における熱輸送特性がマクロな沸騰現象に与える影響を検証する。

結果および考察

局所ひずみがグラフェン全体の熱伝導に与える影響を調べる前に、一次元炭素原子鎖を対象とし、ひずみ印加が材料内部のフォノン伝導に与える影響をグリーン関数法を用いて検証した。その結果、系全体に均一にひずみを印加するよりも、局所的にひずみを印加した方が界面熱抵抗の逆数である熱コンダクタンスが大幅に減少することが明らかになった。これはひずみが印加された原子と非印加の原子の層が超格的になることにより、超格子材料特有のフォノン伝播が不可能な禁制周波数領域が発生するためである。以上の知見に基づいて局所ひずみによるグラフェン材料の熱伝導変調発現に取り組んだ。

グラフェンの両端に引っ張り応力を加えても一般的にはひずみは系全体で均一化されてしまい、局所的なひずみが保たれない。そこで局所ひずみが保たれるようにグラフェンの一部を切り取った構造を対象とした。本研究では局所ひずみの空間分布が異なる二種類の切り取りを考えた。(Fig. 1)

これらの系で局所ひずみが実際に保持されるかどうかを有限温度のもとで分子動力学シミュレーションを実施した。計算により得られた原子座標を解析し、局所ひ

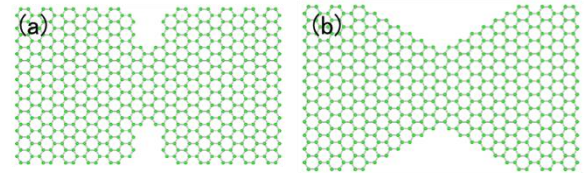


Fig. 1 局所ひずみが保持されるグラフェン・ナノリボン. (a)矩形型切り込み構造, (b)傾斜型切り込み構造.

ずみをマッピングしたコンター図を Figs. 2(a)および2(b)に示す。図の通り、切り込みを入れた部分で局所歪みが保持されていることが分かる。さらに熱流が流れる方向(x 軸:図では紙面右方向)上のひずみ分布をプロットすると、局所ひずみは切り込み方に応じた空間分布を有することが分かる。

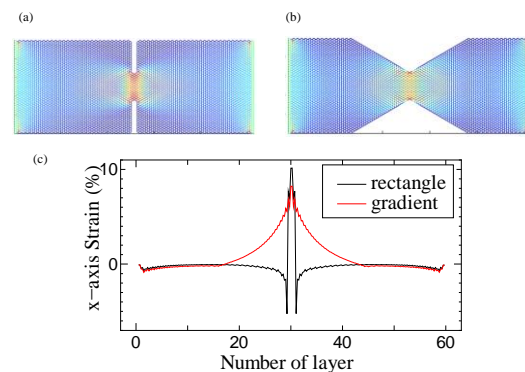


Fig. 2 (a,b)切り込みを入れたグラフェン・ナノリボンの両端を引っ張った後の空間ひずみ分布[(a)矩形型, (b)勾配型] (c)熱流方向の空間ひずみ分布. 黒実線が矩形型, 赤実線が勾配型.

このように断面積を空間的に変えることで局所ひずみを発生または保持することが分かったが、切り込んだことによってフォノンが透過できる面積も小さくなるため、これが界面熱抵抗の要因にもなる。つまり本計算系では、局所ひずみと切り込み、これら二つの効果がフォノン輸送に影響を与えることが予想される。各要因が界面熱コンダクタンスに与える影響を分離して考えるため、以下3つのパターンに対してグリーン関数計算を行い、フォノン透過率およびそれを積分することで熱コンダクタンスを計算した。(1) 形状+ひずみ非印加, (2) 非切り込み(pristine)+ひずみ印加, (3) 形状+ひずみ印加。

はじめに(1)と(2)の系について計算したフォノン透過関数の周波数依存性を Fig. 3に示す。黒線が pristine,

青・赤実線がそれぞれ矩形・傾斜切り込み、緑・橙実線が矩形・勾配のひずみを pristine 形状に印加したモデルである。図より切り込みとひずみともに、矩形型・傾斜型などの切り込み形状による影響がほぼないことが確認できるが、切り込み形状の後に局所ひずみを印加しても、熱コンダクタンスに最も寄与する低周波数領域のフォノン透過関数にあまり変化が見られなかった。

計算した系(a)-(c)の熱コンダクタンス値(Tab. 1)をみれば、切り込みを入れることによる熱コンダクタンスの低減は切り込み方によらず 50%以上と大きい。しかし、切り込み後にひずみを印加しても、熱コンダクタンスの低減率は 24%程度に留まっており、局所ひずみが系全体の熱伝導に与える影響は大きくないことが分かる。

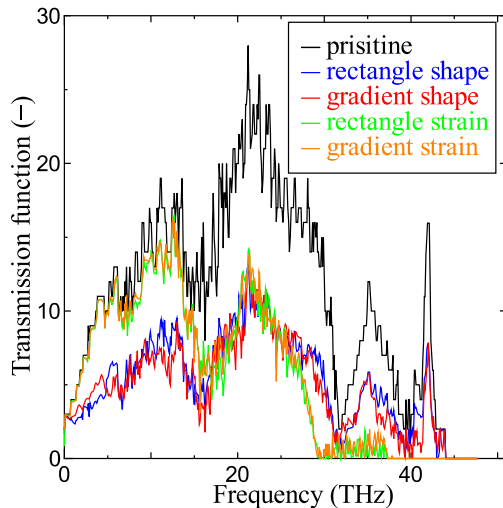


Fig. 3 形状によるフォノン透過関数の変化。黒実線が pristine, 青実線が矩形型切り込み形状, 赤実線が傾斜型切り込み形状, 緑実線が矩形型ひずみ, 橙実線が勾配型ひずみ。

Tab.1 各モデルの熱コンダクタンス(単位:GW/m²K)と Pristine ひずみ非印加からの低減率 (%). 全て室温における計算結果である。

	ひずみ非印加	矩形型ひずみ	勾配型ひずみ
Pristine	3.507	2.368 (32.5%)	2.410 (31.3%)
矩形型切り込み	1.671 (52.4%)	1.264 (64.0%)	
傾斜型切り込み	1.601 (54.3%)		1.218 (65.3%)

まとめ、今後の課題

本研究ではグラフェン・ナリボン材料を対象とし、局所ひずみが系全体の熱伝導変調に与える影響をグリーン関数法を用いて検証した。局所ひずみが熱伝導変調に与える影響を調べるために、一次元炭素原子鎖を対象とし、ひずみの局所性とひずみ量がフォノン透過に与える影響を調べたところ、ひずみ印加・非印加間隔を調整することで、効率的に熱コンダクタンスを低減することが分かった。ここで得られた知見をグラフェン・ナリボンに適用した結果、局所ひずみを導入するための構造制御が熱輸送のボトルネックになってしまい、一次元原子鎖で見られたような局所ひずみによる熱伝導変調が抑えられてしまった。熱スイッチという観点ではオンオフ比が 1.3 程度の性能に留まっているが、今後は形状と局所ひずみが影響する周波数帯を変えて、局所ひずみの効果がより顕著になる界面構造を探索していく予定である。

参考文献

- [1] Z. Guo, et al., Appl. Phys. Lett. 95, 163103 (2009).
- [2] N. Wei, et al., Nanotechnology, 22, 105705 (2011).
- [3] J. Feng, et al., Nature Photonics 6, 866 (2012).