

TSUBAME 共同利用 平成 29 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特性の分子シミュレーション
英文: Thermal transport properties at nanostructured interfaces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: <http://www.phonon.t.u-tokyo.ac.jp>

近年ナノ加工技術の発達により、ナノスケールにおける熱・電子輸送特性制御が可能になりつつある。一方、ナノ構造は複数の特性に影響するため、それぞれの特性を独立に制御することが困難である。例えば、熱電変換を目的とした加工ではナノ構造が熱・電子両方の特性を抑制してしまい、熱伝導率抑制の効果が限定的になってしまう場合が多い。そこで本研究では、グリーン関数法を用いた熱・電子輸送特性解析とベイズ最適化を組み合わせることで、熱電変換特性向上を目的としてグラフェンナノリボンの最適ナノ構造を探索した。その結果、構造最適化により熱伝導特性抑制と電子輸送特性向上を両立させ、熱電変換特性を大きく向上させることが可能であることが明らかになった。

Recent development of nanotechnology enables to tune thermal and electronic properties at nanoscale. Because nanostructures affect different properties, independent tuning of these transport properties is difficult. For instance, nanostructures for thermoelectric applications suppress both of heat and electron transport. Here, we perform optimization of nanostructures of thermoelectric graphene nanoribbons by combining phonon and electron transport simulations with a Green's function method and a Bayesian optimization. We found that the multifunctional structural optimization can independently tune phonon and electron transport properties and considerably accelerate nanostructure design for thermoelectric properties.

Keywords: Nanostructure, thermoelectric property, Green's function method, Bayesian optimization

背景と目的

材料開発ではしばしば複数の材料特性間のジレンマに直面する。例えば、熱電変換では高い電気伝導率、高いゼーベック係数、低い熱伝導率が必要になるが、一般にはそれらは材料構造に対して相反する傾向を示す。ナノ構造技術はこれらの特性をある程度独立に制御することを可能にするが、最適構造の決定は自由度が大きく困難である。本プロジェクトでは、熱電材料としてグラフェンナノリボン(GNR)を例に、複数(フォノンと電子)の輸送特性解析とベイズ最適化による構造最適化を交互に行うことにより、熱・電子輸送特性の独立制御を可能にした。その結果、ランダム探索と比較して約 5 倍の速さで構造最適化が可能になり、熱電変換効率を 10 倍以上向上することに成功した。また、この手法は熱・電子輸送特性のみでなく、機械、化学特性等、様々な物性の最適化に利用することが可能である。

概要

近年のナノ技術の発達により、ナノスケールにおける熱・電子輸送特性制御が可能になりつつある。そこで、本研究では、従来の熱・電子輸送特性解析技術(材料科学)と情報科学を組み合わせたマテリアルズ・インフォマティクス(MI)を駆使することで、種々の目的にかなった最適なナノ構造を提案する。特に、熱電変換材料として注目されているナノ構造体(ナノ粒子の焼結材やナノ粒子を母材に埋め込んだ構造体)を対象とし、第一原理解析やグリーン関数法を用いた材料特性解析とベイズ最適化を組み合わせることで、最適なナノ構造を効率よく探索し、設計指針を確立する。

結果および考察

まず、ベイズ最適化の効率を評価するために、ベイズ探索とランダム探索それぞれにおいて全ての構造の内上位 $k\%$ に含まれる構造を見つけるまでに必要な試

行回数を比較することでベイズ最適化の効果を評価した。この評価では全ての候補構造が解析可能なよう、図 1 挿図のように、幅方向に炭素原子鎖が m 列 ($m = 6-10$) 並んだ zigzag 型 GNR (m -ZGNR) の比較的小さなユニットセルの周期構造を用い構造最適化を行い、完全な六員環の有無により各サイトを“0”, “1”でラベル付けしベイズ探索の descriptor とした。

その結果図 1 に示すように、全ての場合においてベイズ最適化により構造最適化が加速された。また、探索構造が限定される程 (k が小さい程) ベイズ探索の効率が向上していることから、探索構造が多い場合などのより厳しい条件において、ベイズ最適化によりより効率良く構造最適化が可能であることが期待できる。なお、 $m = 6$ の場合に特異点が生じているのは、構造の変化に対して熱電特性が不連続に変化しているためであると考えられる。

さらに、より現実的な系として m -ZGNR ($m = 6-10$) の長さ 30 nm の領域に直径 2.9 Å のポーラスを作製することで熱・電子輸送特性を制御した。図 2A に 7-ZGNR のナノ構造領域に周期的にポーラスを導入した構造と非周期にポーラスが導入された最適構造を示した。図 2B に示すように、ポーラスを導入していない構造と比較して、無次元熱電特性は約 5 倍、11 倍となった。さらに、パワーファクター、熱抵抗ともに構造最適化により向上していることが分かる。

詳細なフォノン・電子輸送特性の解析を行った所、フォノンに関してはポーラスの導入による界面散乱、ポーラス間における干渉効果、さらに非周期性によるフォノンモードのミスマッチの効果が構造最適化により最大限に利用されていると考えられる。また電子に関しては、非周期性によりエッジ構造以外の状態の透過が抑制されることで、エッジ状態を利用することで熱電変換効率が向上していることが明らかになった。

まとめ、今後の課題

以上のようにベイズ最適化により、複数の材料特性を独立に制御することが可能であることが明らかになった。一方で、本研究ではモデルのサイズや手法において現実を完全には再現できていない部分もあるため、今後、計算速度と現実的な計算のバランスをとりつつ、より現実的な系の計算を進めていく予定である。なお、

本プロジェクトの成果は参考文献[1]にまとめられている。

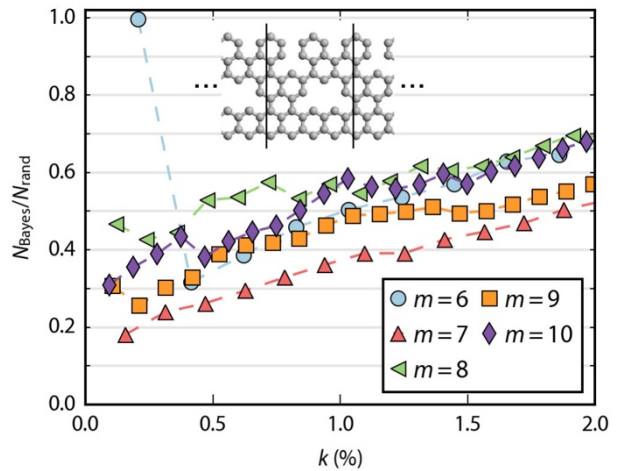


図 1. ベイズ最適化の効果. $N_{\text{Bayes}/\text{rand}}$ はベイズ/ランダム探索において、全ての候補構造の内上位 $k\%$ に含まれる構造を見つけるのに必要な試行回数. [1]

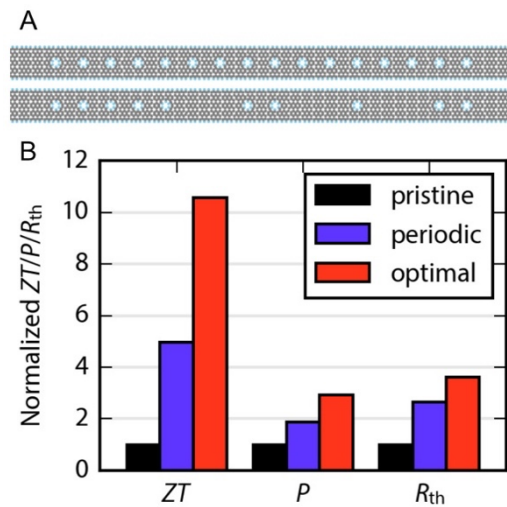


図 2. GNR 熱電材料のナノ構造最適化. A. 規則的なポーラス構造 (上) とランダムにポーラスを作製した最適構造 (下). B. ポーラスのない構造 (黒), 周期的なポーラス構造 (青), 最適化された非周期的なポーラス構造 (赤) の熱電変換特性. 無次元性能指数 (ZT), パワーファクター (P), 熱抵抗 (R_{th}). [1]

参考文献

[1] M. Yamawaki, M. Ohnishi, S. Ju, and J. Shiomi, Sci. Adv.4, eaar4192 (2018).