

ナノスケール・サーマルマネジメント基盤技術の創出
2018年度採択研究代表者

2020年度 実績報告書

福島 孝典

東京工業大学 科学技術創成研究院
教授

分子ダイナミクスを利用した熱マネジメント

§1. 研究成果の概要

前年度に引き続き有機物質における構造-熱物性相関の検討を推進するとともに、新たな熱物性計測、シミュレーション手法の開発を推進した。

時間領域サーモフレクタンズ法により、三脚型トリプチセンを用いてアルキル鎖を高密度に配向集積化させたナノスケール有機薄膜の熱伝導度評価に成功した。また、三脚型トリプチセンを足場として、表面に様々な官能基を高密度集積化させた自己組織化単分子膜 (SAM) を作製し、水/SAM 界面における熱抵抗の官能基依存性を調査した。その結果、親水性の官能基では疎水性官能基と比較して界面熱抵抗が顕著に減少することを見出した。この成果は、分子間相互作用の設計により固液界面の熱制御が可能になることを示唆する。

単結晶や液晶状態で一次元 π -スタック構造を形成するトリフェニレン誘導体の温度波熱分析を行った結果、 π -スタック方向への異方的な熱拡散率は観測されなかった。これは、電気伝導で π -スタック構造が異方的な伝導パスを提供することと対照的である。また強誘電体-常誘電体相転移を示す分子結晶の輸送特性を検討し、分子回転が熱伝導度の温度依存性に大きく影響すること、ならびに一次元水素結合鎖方向に異方的な熱伝導が起こることを見出した。

巨視的な配向および熱物性の制御へ向けて、無機ナノロッドが均一に分散した液晶高分子フィルムを作製し、無機ナノロッドの一軸配向化にも成功した。

新規導入した走査型熱顕微鏡 (SThM) を用いて、有機 SAM の熱物性計測に世界で初めて成功した。さらに、カンチレバーから試料表面への熱輻射を利用した非接触モードにより、表面構造をイメージング可能な新手法を開発した。

熱物性理論開発においては、熱散逸効果を取り込んだモデルを第一原理量子熱伝導シミュレータに導入するとともに、非平衡分子動力学法により、分子ロータ集積体回転緩和と熱伝導の相関に関する計算シミュレーションを実施した。

§2. 研究実施体制

(1) 福島グループ

① 研究代表者: 福島 孝典 (東京工業大学科学技術創成研究院・教授)

② 研究項目

- ・精緻な高密度自己組織化単分子膜を形成する理想的な三脚型チオール分子の開発
- ・熱マネージメント有機材料の開発と熱物性測定

(2) 西野グループ

① 主たる共同研究者: 西野 智昭 (東京工業大学理学院・准教授)

② 研究項目

- ・機械的外力による単分子の熱起電力制御
- ・走査型熱顕微を用いた自己組織化単分子膜の微小スケール熱計測の検討

(3) 中村グループ

① 主たる共同研究者: 中村 恒夫 (産業技術総合研究所機能材料コンピュータシミュレーション研究センター・研究チーム長)

② 研究項目

- ・フォノン散乱による散逸効果を組み込んだ量子非平衡熱伝導シミュレータの開発
- ・開発シミュレータの検証、三脚分子-金属界面系などの界面熱伝導予測計算

(4) 芥川グループ

① 主たる共同研究者: 芥川 智行 (東北大学多元物質科学研究所・教授)

② 研究項目

- ・有機単結晶を用いた熱伝導率測定システムの構築
- ・逐次相転移とダイナミクスが相関した有機-無機ハイブリッド材料の熱伝導性解明

(5) 宍戸グループ

① 主たる共同研究者: 宍戸 厚 (東京工業大学科学技術創成研究院・教授)

② 研究項目

- ・熱マネージメントを指向した ZnO ナノロッド液晶高分子フィルム の作製
- ・高分子フィルムのダイナミクス解析

【代表的な原著論文情報】

- 1) N. Seiki, Y. Shoji, T. Kajitani, F. Ishiwari, A. Kosaka, T. Hikima, M. Takata, T. Someya, and T. Fukushima, "Rational Synthesis of Organic Thin Films with Exceptional Long-range Structural Integrity", *Science* **2015**, 348, 1122–1126.

- 2) T. Imaizumi, R. Takehara, Y. Yamashita, T. Yagi, F. Ishiwari, Y. Shoji, X. Wang, Y. Murakami, T. Nishino, and T. Fukushima, "Thermal transport properties of an oriented thin film of a paraffinic tripodal triptycene", *Jpn. J. Appl. Phys.* **2021**, *60*, 038002.
- 3) F. Ishiwari, G. Nascimbeni, E. Sauter, H. Tago, Y. Shoji, S. Fujii, M. Kiguchi, T. Tada, M. Zharnikov, E. Zojer, and T. Fukushima, "Triptycene Tripods for the Formation of Highly Uniform and Densely Packed Self-Assembled Monolayers with Controlled Molecular Orientation", *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 5995–6005.
- 4) T. Osawa, T. Kajitani, D. Hashizume, H. Ohsumi, S. Sasaki, M. Takata, Y. Koizumi, A. Saeki, S. Seki, and T. Fukushima, T. Aida, "Wide-Range 2D Lattice Correlation Unveiled for Columnarly Assembled Triphenylene Hexacarboxylic Esters", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2012**, *51*, 7990–7993.
- 5) H. Nakamura, "Thermoelectric and Thermal Properties of a (GeTe)₂/Sb₂Te₃ Interfacial Phase-Change Memory Device", *Phys. Status. Solidi, RRL.* **2020**, *15*, 2000393.
- 6) N. Hoshino, and T. Akutagawa, "Contrasting temperature dependences of isostructural one-dimensional ferroelectric crystals NH₄HSO₄ and RbHSO₄ in terms of thermal conductivities", *J. Chem. Phys.* **2020**, *153*, 194503.
- 7) R. Taguchi, N. Akamatsu, K. Kuwahara, K. Tokumitsu, Y. Kobayashi, M. Kishino, K. Yaegashi, J. Takeya, and A. Shishido, "Nanoscale Analysis of Surface Bending Strain in Film Substrates for Preventing Fracture in Flexible Electronic Devices", *Adv. Mater. Interfaces* **2021**, *8*, 2001662.