

最適化したナノ構造により結晶性材料の熱伝導率を最小に

～MI を駆使して熱機能材料の開発へ応用期待～

ポイント

- ナノ構造の最適化によって半導体材料の熱伝導率を制御する技術が求められている。
- マテリアルズ・インフォマティクスによって熱伝導率を最小化する技術を実証した。
- 熱電変換技術など、低熱伝導率の結晶性材料が求められる応用での活用が期待される。

JST 戦略的創造研究推進事業において、東京大学の塩見 淳一郎 教授らは、半導体材料の熱伝導率を内部のナノ構造によって低減することを目的として、機械学習と分子シミュレーションを組み合わせたマテリアルズ・インフォマティクス (MI) で最適なナノ多層構造を設計し、作製、評価することで熱伝導率の最小化に成功しました。

2017年に本研究グループは計算科学に基づくMIによって、熱伝導率を最小あるいは最大にする最適構造を設計する手法を開発しました。しかし実験による実証はできておらず、ナノスケールにおける構造の作製と物性の計測に基づく最適構造の実現が望まれていました。

そこで本研究グループは、2種類の材料を数ナノメートル (nm) ずつ交互に積み重ねる超格子構造を対象として、原子レベルで構造の制御が可能な成膜法とナノスケールの膜厚の熱伝導率が評価できる計測法を駆使し、熱伝導率を最小化する最適な非周期超格子構造を実現しました。さらに最適構造では熱伝導を担う格子振動 (フォノン) が波動的に干渉する効果が最大化し、熱伝導が強く抑制されることを明らかにしました。

今後、熱電変換材料など、電気伝導率や機械的特性を維持しながら熱伝導率を低減できる熱機能材料の開発に役立つことが期待されます。

本研究成果は、米国科学誌「Physical Review X」のオンライン版で近日中に公開されます。

本成果は、以下の事業・研究領域・研究課題によって得られました。

戦略的創造研究推進事業 チーム型研究 (CREST)

研究領域: 「微小エネルギーを利用した革新的な環境発電技術の創出」

(研究総括: 谷口 研二 大阪大学 名誉教授、副研究総括: 秋永 広幸 産業技術総合研究所 デバイス技術研究部門 総括研究主幹)

研究課題名: 「メカノサーマル工学による熱電技術の低コスト化と高付加価値化」

研究代表者: 塩見 淳一郎 (東京大学 大学院工学系研究科 機械工学専攻 教授)

研究期間: 平成28年10月～令和4年3月

JSTはこの領域で、さまざまな環境に存在する熱、光、振動、電波、生体など未利用で微小なエネルギーを、センサーや情報処理デバイスなどでの利用を目的とした電気エネルギーに変換 (環境発電) する革新的な基盤技術の創出を目指します。

上記研究課題では、IoT用センサーの自立電源としての応用などを目的として、熱電発電デバイスに、機械的特性と熱電特性を複合した新しい機能を材料レベル (材料内部のナノ構造や局所ひずみを利用して安価材料を高効率化) とデバイスレベル (熱電性能を犠牲にせずに発電モジュールを超柔軟化) で付加します。これによって、費用対効果および複雑熱源 (粗面・曲面・伸縮面) での設置性・熱回収性を大幅に向上し、熱電発電技術の実用化と普及を加速させます。

<研究の背景と経緯>

さまざまな機器内部の熱の伝わり方を制御することは性能や耐久性に直結するため、構成部材の実効的な熱伝導率を自在に制御することが求められています。特に半導体や絶縁体の緻密材料の熱伝導率を低減することは、熱電変換デバイスの効率向上や、熱を利用する光センサーやガスセンサーの感度向上および消費電力低減、燃焼や加熱プロセスでの熱効率や機器の耐久性向上などに役立つ重要な課題です。半導体や絶縁体の結晶の熱伝導は結晶格子の振動が伝わることによって生じますが、その格子振動をフォノンと呼び、さまざまな周波数や波数のフォノンが輸送される描像で熱伝導は理解されます。

近年、材料の中にナノ構造を設けることにより、単結晶や多結晶材料のようなバルク材料と比べて、熱伝導率を大幅に小さくすることが明らかになってきました。フォノンを粒子のように見なし、界面でのフォノン粒子の散乱によって熱伝導率を低減しています。しかしながら、室温ではフォノンの波長は数ナノメートル（nm）しかないため、干渉など波特有の効果を利用することは容易ではありません。一方、半導体の分野においては、数nmの異なる材料を交互に積み重ねる超格子構造作製技術が知られています。そこで、本研究では、この超格子構造を用いて、熱伝導の制御性を試みました。

フォノンの波動性を利用した熱伝導制御の重要な課題は、フォノンの波動的な性質を十分に活用する最適な超格子構造の実現です。それには多くの自由度を持つナノ構造を膨大な数の候補構造から最適なものを探し出さなければならず、機械学習などを使った新しい方法が必要になります。そこで、2017年に本研究グループは計算科学に基づくマテリアルズ・インフォマティクス（MI）によって、熱伝導率を最小あるいは最大にする最適構造を設計する手法を開発しました。しかし実験による実証はできておらず、ナノスケールにおける構造の作製と物性の計測に基づく最適構造の実現が望まれていました。

<研究の内容>

本研究グループは、MIによるナノ構造の熱伝導率の最低化の実証、およびフォノンの波動性を最大限に生かしたナノ構造の同定とメカニズムの解明を進めました。材料系としては、原子レベルで超格子構造を制御する技術が半導体分野で成熟しているガリウムヒ素（GaAs）とアルミニウムヒ素（AlAs）の組み合わせを採用しました。結晶軸がそろっていて、膜厚を精密に制御した超格子構造を作製できることから、本研究の対象として適しています。

まず、原子グリーン関数法^{注1)}によるフォノンの波動的輸送計算とベイズ最適化手法^{注2)}による機械学習を交互に組み合わせることにより、熱伝導を最小化する最適化された非周期的超格子を設計しました。次に、設計した最適構造を分子線エピタキシー法^{注3)}により実際に作製し、時間領域サーモリフレクタンズ法^{注4)}で熱伝導率の温度依存性を計測しました。その結果、実験において設計通りの熱伝導率と温度依存性が得られ、本手法による非周期超格子構造および熱伝導物性の最適化を実証しました。

また、最適な非周期的超格子の熱伝導率は従来の周期的超格子よりも大幅に小さくなりました。さらにメカニズムの解明を進めたところ、非周期的超格子の各部位が特定の周波数のフォノンを干渉させ、伝搬を遮断していることが分かりました。熱伝導にはさまざまな周波数のフォノンの輸送が寄与しますが、影響する周波数の異なるさまざまな局所的な構造をつなぎ合わせたものが最適非周期構造であることが明らかになりました。なお、こ

れは干渉などのフォノンの波動的な性質を利用してはじめて実現されるものです。

ナノスケールでの構造制御技術と熱伝導計測技術によって、MIを用いたナノ構造による熱伝導の最適制御を実験で実証することに成功しました。

<今後の展開>

本研究では、半導体超格子構造をモデル材料として、熱伝導率の制御を目的とした設計、作製、評価、機構解明における、MI手法の有効性が実証されました。今後、MI手法のさまざまな材料系への応用が期待されます。また、非周期構造の最適化によって、室温付近の温度でもフォノンの波動的な性質を最大限に生かした熱伝導制御が可能であることも明らかになり、熱電変換デバイスや光センサー、ガスセンサーなど電気伝導や機械的特性などを維持しながら低熱伝導が求められるフォノンエンジニアリング^{注5)}の発展へ寄与することが期待されます。

<付記>

本研究は、東京大学の平川 一彦 教授らと共同で行いました。

<参考図>

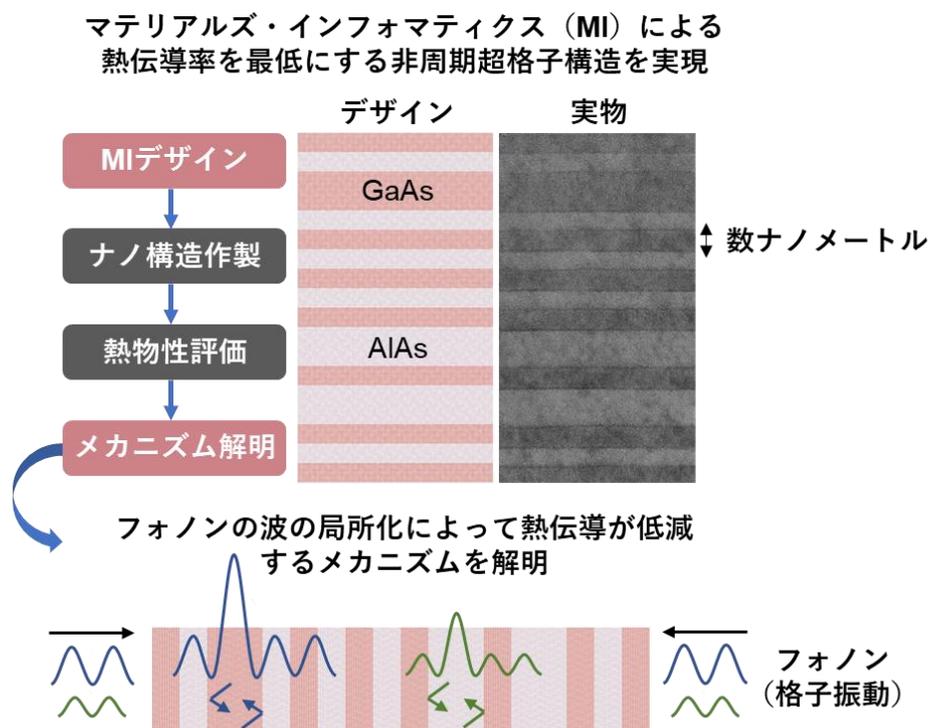


図 研究のフローチャート

MIを用いてデザインした最適ナノ構造（非周期超格子構造）を実際に作製し、その熱伝導率の評価することによって最適化を実証した。実際に作製した構造の電子顕微鏡像（図：実物）。さらに、最適化の結果を踏まえて解析を進めることによって熱伝導率の低減メカニズムを解明した。

<用語解説>

注1) 原子グリーン関数法

原子間に働く力定数を基にグリーン関数を用いて、特定のナノ構造を透過するフォノンの割合（フォノン透過関数）を計算する方法。フォノン透過関数は周波数に依存し、周波数に対して積分することで熱伝導度や実効熱伝導率が得られる。

注2) ベイズ最適化手法

ベイズ確率の考え方を用いた推論に基づき、形状のわからない関数を最適化する手法。訓練データから確率的な予測モデルを学習させ、そのモデルの予測により次に評価すべき未知データを決定し、その評価の結果を用いてさらにモデルを学習させ、再び予測、評価を行う、というプロセスを繰り返す最適化手法である。

注3) 分子線エピタキシー法

高真空下で、原料となる金属などを蒸発させると、その分子の流れは残留ガス分子と衝突することなく直進する。この分子線を基板に当てると、原子や分子を規則的に配列でき、方位のそろった結晶成長（エピタキシャル成長）ができる。本研究では、分子線（実際には金属原子ビーム）を切り替えることで、ガリウムヒ素（GaAs）とアルミニウムヒ素（AlAs）をnm厚みで交互に積み重ねた超格子構造を作製した。

注4) 時間領域サーモリフレクタンス法

ピコ秒スケールのパルスレーザーで試料表面を加熱および测温し、その過渡的な応答（温度が緩和していく様子）から試料表面から数十～数百nmの領域の熱伝導率を計測する方法。本研究で作製した超格子構造は、全体の膜厚が数十～数百nmであるため、本手法が有用である。

注5) フォノンエンジニアリング

フォノンの状態や輸送、または他の準粒子との相互作用や相関を科学し、熱物性を制御する工学。格子振動を意識しながら固体材料やデバイスの熱伝導を制御するという意味においては、古くからある概念であるが、近年の構造作製、計算、計測技術の進歩によって、フォノン輸送の物理の理解が進んだことで、特にナノ構造を利用したアプローチによって、熱輸送の制御性が向上している。

<論文タイトル>

“Machine learning-optimized aperiodic superlattice minimizes coherent phonon heat conduction”

（機械学習で最適化した非周期超格子によるコヒーレントフォノン熱伝導の最小化）

<お問い合わせ先>

<研究に関すること>

塩見 淳一郎 (シオミ ジュンイチロウ)

東京大学 大学院工学系研究科 機械工学専攻 教授

〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1

Tel : 03-5841-6283 Fax : 03-5841-0440

E-mail : shiomi[at]photon.t.u-tokyo.ac.jp

<JSTの事業に関すること>

嶋林 ゆう子 (シマバヤシ ユウコ)

科学技術振興機構 戦略研究推進部 グリーンイノベーション・グループ

〒102-0076 東京都千代田区五番町7 K's 五番町

Tel : 03-3512-3531 Fax : 03-3222-2066

E-mail : crest[at]jst.go.jp

<報道担当>

科学技術振興機構 広報課

〒102-8666 東京都千代田区四番町5番地3

Tel : 03-5214-8404 Fax : 03-5214-8432

E-mail : jstkoho[at]jst.go.jp

東京大学 大学院工学系研究科 広報室

〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1

Tel : 03-5841-6295 Fax : 03-5841-0529

E-mail : kouhou[at]pr.t.u-tokyo.ac.jp