

審査の結果の要旨

氏名 堀 琢 磨

本論文は「フォノンボルツマン輸送にもとづいたナノ構造における熱伝導解析」と題し、ナノスケール構造体の格子熱伝導率が評価できる解析ツールを開発し、ナノ構造体の熱伝導率の構造依存性およびその機構を明らかにしたものである。結晶材料のナノスケール構造の格子（フォノン）熱伝導の基礎を理解すること、またはその制御性を明らかにすることは、熱電変換の性能向上から微細化が進む集積回路の熱マネージメントに至るまで、様々な応用において重要である。構造の代表長さがフォノンの平均自由行程より短くなると、構造内部におけるフォノン同士の散乱よりも高い頻度でフォノンが界面によって散乱されるため、全体のフォノン散乱頻度が単結晶バルクのそれと比較して増大し、系の実効的な熱伝導率が低下する。特に熱電変換においては、性能指数が熱伝導率に反比例することから、ナノワイヤやナノ多結晶体を始めとした様々な形態のナノ構造が作製されている。これらのナノ構造体材料の設計に向けては、ナノスケール構造の熱伝導を定量的に評価する解析技術が欠かせない。以上を背景に本論文では、はじめに、第一原理計算から導出した単結晶のフォノン輸送物性を入力として、モンテカルロ法によってフォノンボルツマン輸送方程式を解くことによって、ナノスケールでのフォノン輸送を解析する技術を開発している。加えて、より複雑かつ大規模な構造を解析するために計算負荷の軽いレイトレーシング法を用いてフォノンがナノ構造界面に散乱される頻度を計算し、内部のフォノン散乱頻度と経験的に足し合わせる手法も開発している。次に、それらを用いて、代表的なナノ構造化熱電材料のフォノン輸送を解析し、熱伝導率を低減する上で最適な構造や理論的な限界値を同定しており、論文は全5章よりなっている。

第1章は、「序論」であり、ナノ構造によって熱伝導が低減されることの熱電変換材料や集積回路の熱マネージメントでの重要性、およびミクロスコピックな視点から正確な熱伝導解析を行うことの重要性を議論するとともに、論文全体の流れを述べている。

第2章は、「シミュレーション手法とその理論」であり、本研究で用いられた方法論およびその基礎となる理論を詳細に説明している。本研究では、ナノ構造における熱伝導率をボルツマン輸送の描像でフォノン輸送を取り扱うことで計算している。計算手法としてはモンテカルロ法とレイトレーシング法の2つを適宜用いている。モンテカルロ法では、熱浴に挟まれた非平衡系において、フォノンの移流および散乱現象の時間発展を計算する。

これにより定常状態となった後の熱流束(フォノンの正味の輸送エネルギー)と設定した境界の温度から実効的な熱伝導率が得られる。一方、レイトレーシング法では、ナノ構造内部での散乱とナノ構造界面で散乱を独立した事象と捉え、それぞれの散乱頻度(または平均自由行程)を別々に計算した上で Matthiessen 則によって足し合わせる。いずれの手法においてもバルクのフォノン物性が必要となるが、本研究ではそれらに第一原理から計算したものを使用している。

第3章は、「妥当性の検証」であり、モンテカルロ法により薄膜やナノワイヤ等の理論解が知られる系において熱伝導率を計算し、一致を確認している。また、レイトレーシング法によるシミュレーションでも同様に得られた平均自由行程が理論解と一致することを確認している。

第4章は、「Fishbone 型シリコンナノワイヤ」であり、モンテカルロ法を用いて Fishbone 型シリコンナノワイヤの熱伝導率を計算している。ワイヤの太さを変調した構造によって通常のナノワイヤよりも熱伝導率を低減できることを示した共同研究者らの実験を受けて、ネック部分の太さや構造変調の大きさやピッチの熱伝導率への影響を詳細に調べ、熱伝導率が極小値を取る構造およびその機構を明らかにしている。

第5章は、「鉛テルルとナノ結晶系」であり、鉛テルル(PbTe)結晶内にストロンチウムテルル(SrTe)などの異原子のナノ結晶を析出させた材料の熱伝導率を解析している。これらの材料は実験において内部ナノ結晶析出体によって熱伝導率が低下し、高い熱電変換性能が達成されたと報告されているが、その解析的裏付けはなかった。そこで、本研究ではモンテカルロ法を用いて PbTe-SrTe 結晶の熱伝導率の理論的な最低値を検証している。ナノ結晶が分散した系を想定し、最大熱抵抗をもたらす界面を仮定するため、フォノンはナノ結晶界面において拡散的に 100 %反射すると設定した。その結果、計算と実験の値が一致したことから、実験の PbTe/SrTe 界面は効率よくフォノンの輸送を阻害していることを明らかにしている。また、周波数ごとの熱伝導率への寄与を計算することによって、ナノ析出構造では高周波のフォノンの輸送を阻害できないことを明らかにし、合金化により熱伝導率がさらに低減できる可能性を示している。

第6章は、「ナノ多結晶構造」であり、バルク材料として多用されているナノ多結晶構造の熱伝導解析を行った。まず、ナノ多結晶体の粒径分布(対数正規分布)をボロノイ図および遺伝的アルゴリズムを用いて再現している。次に、作製した複雑な多結晶構造および単純立方構造に対してレイトレーシング法を用いて実効的な平均自由行程を求めている。その結果、単純立方構造に比べ、ナノ多結晶構造の平均自由行程は 1.2 倍程度大きくなることを明らかにしている。さらに、これを用いて環境親和型の熱電変換材料として期待され

るシリコンナノ多結晶構造の熱伝導率およびその粒径分布への依存性を明らかにしている。

第7章は、結論であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上を要するに、本論文ではモンテカルロ法によるボルツマン輸送方程式の解法に、第一原理計算にもとづいたフォノン輸送特性を入力として用いることでナノ構造体の正確な計算を実現した。これにより、熱電変換材料としての応用が期待されるナノ構造体のフォノン輸送を解析し、構造の最適化や熱伝導率の理論的な限界を示した。また、レイトレーシング法を用いることで平均自由行程の計算方法を確立し、ナノ多結晶体の熱伝導率の粒径分布への依存性を評価した。以上によって、ナノ構造化された熱電変換材料の開発に有用な設計指針を得ることに成功しており、分子熱工学の発展に寄与するものであると考えられる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。