

分子動力学法による固体境界面での熱抵抗に関する考察

Thermal Boundary Resistance at Solid Interface by Molecular Dynamics Method

*崔 淳豪(東大院学) 伝正 丸山 茂夫(東大院)

Soon Ho CHOI and Shigeo MARUYAMA

Dept. of Mech. Eng., The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-8656

The thermal boundary resistance (TBR) at a solid-solid interface plays an important role in the design and performance of electronic devices such as high-temperature superconductor, large scale integrated circuit, or superlattice, since the heat removal from devices is a crucial factor for their intended operation. Typical theories for the analysis of TBR are acoustic mismatch model (AMM) and diffuse mismatch model (DMM). However it is well known that these models can predict only qualitative experimental trends. Acoustic impedance mismatch model (AIMM) for the macroscale continuum was recently applied to analyze TBR at an interface between two dissimilar materials. However, it was found that AIMM was also unsatisfactory. Therefore, a corrected microscale AIMM (CMAIMM) is developed in this study for quantitative predictions. The developed CMAIMM shows relatively good agreement with the MD results than the previous models.

Keywords: Heat Conduction, Molecular Dynamics Method, Thermal Boundary Resistance, Temperature Jump

1. はじめに

近年の薄膜積層技術では厚さ数Åから数百μmまでの薄膜製作が可能となり、Superlatticeの場合にはその厚さを原子単位まで制御することができる。これらの薄膜は主に集積回路や超伝導体薄膜装置として使用される。このようなデバイスの性能は発熱制御や放熱性能によって左右されるため、薄膜の熱伝導解析は極めて重要である⁽¹⁾。また、上記の薄膜の熱伝導特性においては、境界面での界面熱抵抗(Thermal Boundary Resistance, TBR)が決定的な因子となる。TBRの解析のため、代表的な理論として境界でのフォノン(Phonon)の伝播を仮定したAMMとDMMの二つのモデルがよく使われ、実験値の定性的な傾向は表現できる。しかし、Fig.1に示したように定量的には数倍から数十倍の差を示すことがよく知られており⁽²⁾、現在まで定量的な予測まで可能なモデルは開発されていない。そこで、本研究においては、分子動力学法によるシミュレーション結果に基づいて、新たなTBRモデルを提案する。

2. 計算方法

Fig.2のようなアルゴン分子のfcc <111>面を並べた固体系を用いて熱伝導解析を行った。系の下半部はアルゴン分子で、上半部は他の物性はアルゴン分子と同じであるが質

量だけ変えたものである⁽³⁾。Table 1 は計算で用いたL-J(12-6)ポテンシャルのパラメータで、運動方程式の積分には誤差が Δt^3 に比例する速度 Verlet 法を用いた。系は最下の3層と最上3層を固定分子層とし、隣接する3層は速度スケールリングによって温度差を与える温度制御層である。系の温度分布はこれらの分子層を除いた層で計算した。

Fig.3 は 1:2 と 1:3 の質量比を持つ系(以後系A)の例で、系の温度分布と熱流束を示すものである。比較のため同じ寸法の質量の同一な分子系の両端に系Aと同じ温度差を付けた系(以後系B)の熱流束も一緒に載せた。質量比が増加するほど境界での温度ジャンプは増加し、熱流束は減少することがわかる。なお、計算系は全て $18 \times 18 \times 18$ の分子数で、平均温度は 40 K、両端の制御温度の温度差は 4 K とした。

3. 参照系と熱抵抗の原因

境界面のフォノン伝播から TBR を計算する従来の AMM と DMM とは別に、最近、松本⁽³⁾らは Fig.3 に示した系Aの熱流束と参照系として系Bの熱流束との比をエネルギー反射率 E_{rf} と定義し、AIMM モデルではシミュレーション結果を表現できないことを示した。AIMM モデルは、境界面の存在がエネルギーを運ぶ波の通過を妨げ、入射波の一部だけ境界面を通り抜けられるという巨視系の音響インピーダンスの違いによる波の反射モデルである。

$$E_{rf} = \left(\frac{1 - Z_2/Z_1}{1 + Z_2/Z_1} \right)^2 \quad (Z = \rho \cdot c) \quad (1)$$

ここで、 Z は音響インピーダンスで、計算系は質量以外にはすべて同じ物性であるので Z の比は単に質量比の平方根となる。Table 2 は松本⁽³⁾らの MD 計算(fcc<100>)と本研究の結果(fcc<111>)をまとめたものである。本研究の計算結果は 400 ps の計算を 5 回繰り返した平均値である。松本ら⁽³⁾の結果

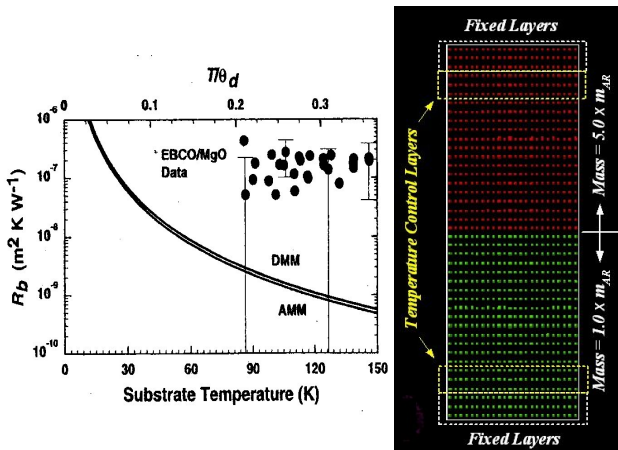


Fig.1 Comparison of AMM/DMM v.s. HTSExperimental Results⁽²⁾

Fig. 2 System for TBR

Table 1 L-J Potential Parameter

Length Parameter, σ	3.4 Å
Depth of Potential Well, ϵ	1.67×10^{-21} J
Mass of Argon, m	6.634×10^{-26} kg
Time Interval for Calculation	1 fs ($\Delta t^* = 1/2143$)
Cut-off Length	3.5σ

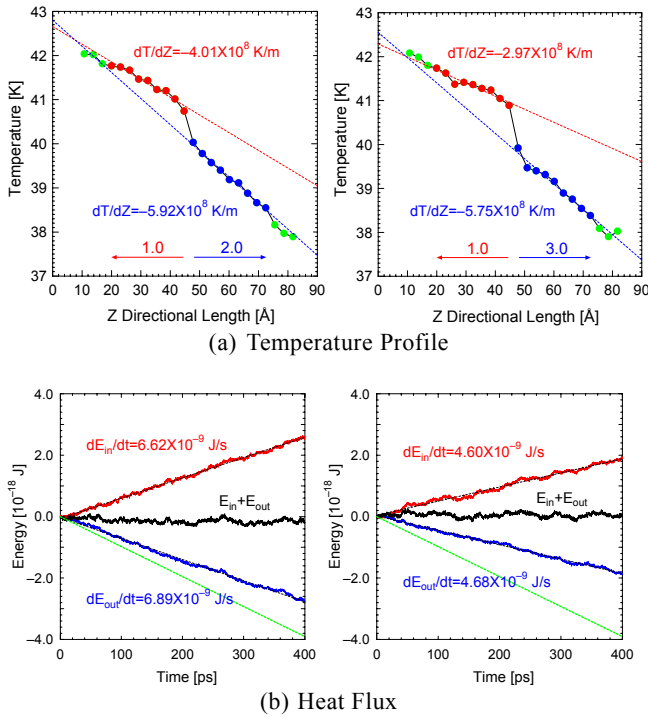


Fig.3 Temperature Profile at Interface and Heat Flux

と同様、AIMM による予想値と差は大きく、結局 AIMM も満足すべきモデルではないことが分かる。

ここで、AIMM の式(1)は境界上に(ア)両側の変位が同じ、(イ)両側に作用する力が同じという条件で導ける。ところが、分子スケールから考えると、境界に接するある一つの分子が一定方向に運動すると、境界の反対側の重い分子もその影響を受けて同じ方向に動くとしても、同じ変位で動くことを仮定するのは不自然である。むしろ、この場合の、異種分子の境界での変位は分子質量比に比例すると仮定する方が自然である。このように考えて、修正した境界条件のもとでエネルギー反射率を求めたのが式(2)の CMAIMM モデルである。

$$E_{rf} = \left(\frac{1 - \alpha \cdot Z_2 / Z_1}{1 + \alpha \cdot Z_2 / Z_1} \right)^2 \quad (\alpha = m_2 / m_1) \quad (2)$$

更に系Bを系Aの参照系として選ぶことにも問題がある。この場合、例えば系の長さを変えると反射率が変化してしまう。系Aの比較対象としては境界で温度ジャンプが存在せずに、両端の温度差が系Aと等しいと仮定した仮想的な系Cとすべきである。異種分子間の境界での温度ジャンプがないと仮定すると、中央層の温度は Fig.4 (b) に示したように A 点は低下、B 点は上昇して等しくなる。結局両方とも温度勾配が増加することになって熱流束が増加する。参照系を求めるためには A 点と B 点の温度変化を知らなければならないが、これは無次元熱伝導率の定義から次のように算定できる。

$$\Delta T_A = \Delta T_{gap} / (1 + \sqrt{m_2 / m_1}) \quad (3)$$

$$\Delta T_B = \Delta T_{gap} \sqrt{m_2 / m_1} / (1 + \sqrt{m_2 / m_1}) \quad (4)$$

なお、本計算システムで無次元熱伝導率が一定となることは、Fig. 3 の質量による温度勾配の差から確認できる。Fig.4(b)より、参照系の熱流束はもとの系であるの熱流束と比べて $\Delta T_{ref1} / \Delta T_1$ 、或は $\Delta T_{ref2} / \Delta T_2$ の大きさで増加する。

$$\dot{q}_{ref} / \dot{q} = \Delta T_{ref1} / \Delta T_1 = \Delta T_{ref2} / \Delta T_2 \quad (5)$$

結局、系Aと系Cの熱流速の比であるエネルギー反射率は1から上式の逆数を引く形となる。

Table 2 Comparison of MD Results and AIMM/CMAIMM

Mass Ratio	E_{rf} from Ref. (3)	E_{rf} from MD Cal.	E_{rf} by AIMM	E_{rf} by CMAIMM
1:2	53 %	20 %	5 %	20 %
1:3	---	33 %	7 %	41 %
1:4	62 %	---	11 %	55 %
1:5	---	54 %	15 %	65 %
1:7	---	64 %	20 %	76 %
1:9	77 %	---	25 %	83 %

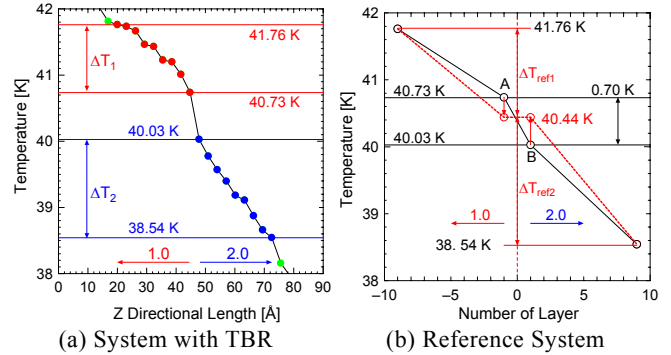


Fig.4 Reference System without Temperature Jump

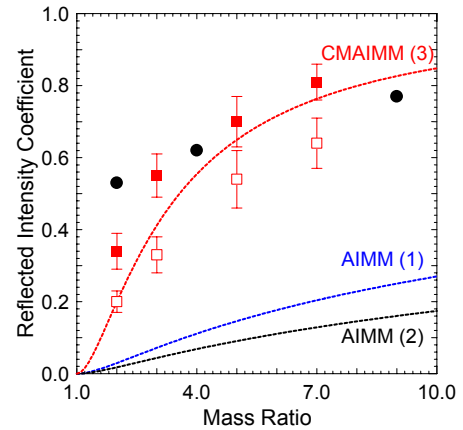


Fig.5 Comparison of Energy Reflection Rate

$$E_{rf} = 1 - \Delta T_1 / \Delta T_{ref1} = 1 - \Delta T_2 / \Delta T_{ref2} \quad (6)$$

4. 結果と考察

Fig.5にTable 2の計算結果を示す。曲線(1)は音響インピーダンスを質量比から計算した場合、曲線(2)は計算系に直接パルスを与えて求めた音速比から計算した場合のAIMMによるエネルギー反射率の予測値である。曲線(3)は音速比から音響インピーダンスを計算したCMAIMMによる予測値である。●表示と■表示は系Bを参照系にした場合の松本らの結果と本研究の結果で、□表示は系Cを参照系にして式(6)から計算したエネルギー反射率である。シミュレーション結果とCMAIMMによる予測値は10%程度の差で一致し、TBRを相当定量的に予測できることが分かる。既存のAIMMとDMMが実験値と大きい差を示すことは、これらのモデルで仮定する境界でのフォノンの伝搬確率によるといわれ、様々な修正が試みられているが、CMAIMMでは巨視系に適用するAIMMに単に質量比を修正係数として考慮することによって十分正確なTBRの予測ができる。

参考文献

- (1) 崔淳豪・丸山茂夫, 39 回伝熱シンポ (2002), 65.
- (2) P.E. Phelan, J. Heat Transfer, 120 (1998), 37.
- (3) 松本・他 2 名, JSME 論文集 B68 (2002), 87.