酸化被膜型 Si ナノワイヤにおける熱伝導率低下の起源に関する考察

Origin of Thermal Conductivity Reduction of Si Nanowire Covered with Oxide Film 早大理工¹, 筑波大², 学振特別研究員 DC2³ ^O図師 知文^{1,3}, 大毛利 健治², 山田 啓作², 渡邊 孝信¹ Waseda Univ.¹, Univ. of Tsukuba², JSPS Research Fellow³ ^OT. Zushi^{1,3}, K. Ohmori², K. Yamada², T. Watanabe¹ E-mail: zushi@watanabe.nano.waseda.ac.jp

【はじめに】SiNW の熱伝導率 κ は、NW 表面の原子構造に依存して Si バルクに比べ1 桁から 2 桁程度低下することが実験的に確認されている^{III}。次世代 Si ナノデバイスにおいては、この ような低次元 Si ナノ結晶の特殊な熱的性質は性能を左右する因子になると予想されており、Si ナノ構造中の熱伝導メカニズムの正確な理解が重要な課題となってきている。SiNW の著しい κ の低下には NW を覆う SiO₂ 絶縁膜が大きく関与していることが最近の分子動力学(MD)法を用 いた解析により明らかにされている。He ら^{III}は SiO₂/Si 界面付近のフォノン状態密度(VDOS)が 低下することから、界面付近に存在するランダムな格子配置をもつ Si 原子が κ 減少と関係して いることを主張した。本研究では SiO₂膜の熱伝導に及ぼす影響のさらなる理解のため、フォノ ンのエネルギー分散関係の観点から κ 低下の要因を探った。MD 法を用いて酸化被膜型 SiNW における κ の酸化膜厚依存性を調査し、音響フォノンモードのエネルギー分散との相関から κ 低下の起源を考察する。

【計算方法】酸化被膜型 SiNW は円柱状 SiNW を表面から layer-by-layer 酸化することにより作製した。本研究では酸化膜のない SiNW と、2原子層ならびに3原子層の SiO₂膜に覆われた SiNW を解析対象とした。 κ の算出には非平衡 MD 法^[3]を採用した。SiNW 結晶の左端(右端)に 275K(325K)の低温(高温)熱浴を設置し、1.2 ns の MD 計算の後、NW 内の温度勾配 ∇T と、単位 面積・単位時間内に熱浴に加えられた熱流速 J の比からフーリエ則($\kappa=-J/\nabla T$)に基づいて κ を見積もった。フォノン分散関係は、MD 計算から得られる原子位置の時系列データから動的構造 因子を求め、その絶対値の濃淡図から得た。

【計算結果と考察】Fig.1にSiNWの酸化膜厚とкの関係を示す。厚い酸化膜を有するSiNWほど低いкを示しており、SiO2膜が κ減少に大きく影響していることが分かる。Fig.2は各モデルの音響フォノンの分散関係を示している。酸化被膜を有するSiNWの分散関係においては、3THz以下の領域に酸化膜のないSiNWには存在しない振動状態が発現し、膜厚の増加に伴いそれらの強度が強くなっていることが見て取れる。これは、酸化膜によって格子配置を乱されたSi原子の振動成分によるものと考えられ、それらのエネルギーが低周波数領域に拡がっているものと推察することができる。その結果、酸化膜に覆われたSiNWのVDOSは、低周波数領域にそ

の調和近似できない成分を長いテールとしてもつブロードな形となる(Fig. 3)。これらの計算結果は、SiO2膜の存在に起因する低エネルギーの振動により、SiNWのκが低下する可能性を示唆している。

【謝辞】本研究は科学研究費補助金・基盤研究(B)の助成を受けて行われた。

- [1] A. Hochbaum *et al.*, Nature, **451**, 163 (2008).
- [2] Y. He and G. Galli., Phys. Rev. Lett., 108, 215901 (2012).
- [3] S. H. Choi et al., J. Kor. Phy. Soc., 43, 747 (2003).



Fig. 2. Phonon dispersion relation of acoustic phonon modes of (a) bare SiNW, (b) SiNW with 2 mono layers (ML) oxide and (c) SiNW with 3 ML oxide.



Fig. 1. ĸ of SiNW as a function of oxide thickness.



Fig. 3. Vibrational density of states of (a) bare SiNW, (b) SiNW with 2 ML oxide and (c) SiNW with 3 ML oxide.