分子動力学シミュレーションによる IV 族混晶のフォノン物性の起源の調査

Origin of Phonon Properties of Group IV Alloys Studied by Molecular Dynamics Simulation 早大理工¹、学振特別研究員 PD²、 ^O富田 基裕^{1,2}、小笠原 成祟¹、渡邊 孝信¹ Waseda Univ.¹, JSPS Res. Fellow PD², ^OM. Tomita^{1,2}, M. Ogasawara², and T. Watanabe¹ E-mail: tomita_motohiro@watanabe.nano.waseda.ac.jp

【はじめに】IV 族混晶半導体は、合金散乱によ る低い熱伝導特性を有し、バンドチューニング によるキャリア移動度の向上も可能であるこ とから、熱電変換材料として高い潜在能力を持 っている。混晶化による大きな熱伝導率低下は 異なる質量の原子によって生じるフォノンの 質量散乱によるものが大きいとされ[1]、我々の これまでの IV 族混晶の分子動力学(MD)計算で も、過去に報告されている熱伝導率を再現する ことに成功している[2]。MD計算では、元素の 質量の違いと原子間相互作用の違いの両者が 考慮されているが、熱伝導率低下の主原因が単 にフォノンの質量散乱にあるのか、原子間相互 作用の違いも影響しているのかまでは検証で きていない。本報告では、原子量と相互作用ポ テンシャルを独立に変化させた仮想系の MD シミュレーションを実施し、IV 族混晶のフォノ ン物性の起源を詳しく調査した。

【実験】原子量約28の²⁸Si原子を基軸として、Si の原子量を変化させた⁷³Si, ¹¹⁹Siおよびポテンシ ャルを変化させた²⁸Ge, ²⁸Snを含む²⁸Si_x⁷³Si_(1-x), ²⁸Si_x¹¹⁹Si_(1-x), ²⁸Si_x²⁸Ge_(1-x), ²⁸Si_x²⁸Sn_(1-x), ²⁸Si_x ⁷³Ge_(1-x), ²⁸Si_x¹¹⁹Sn_(1-x) 混晶モデルについてMD 計算を行った。サイズは単位格子30×4×4個分で、 3次元周期的境界条件を課している。原子間ポ テンシャルについてはStillinger-Weberポテンシ ャルを用いた。ポテンシャルパラメータは、格 子定数、Γ点のフォノン周波数、ならびに分子軌 道計算で求めた変形特性を再現するように調 整したものを利用した[1]。

【結果】Fig. 1 に MD 計算によって導かれた ²⁸Si_(1-x)⁷³Si_x, ²⁸Si_(1-x)¹¹⁹Si_x, ²⁸Si_x²⁸Ge_(1-x), ²⁸Si_x ²⁸Sn_(1-x), ²⁸Si_(1-x)⁷³Ge_x, ²⁸Si_(1-x) ¹¹⁹Sn_x 混晶の熱伝導 率を示す。赤色のプロットが Si 原子の原子量の みを変化させた ²⁸Si_x ⁷³Si_(1-x)および ²⁸Si_x¹¹⁹Si_(1-x) の MD 計算結果、紫色のプロットが結合ポテン シャルのみを変化させた ²⁸Si_x²⁸Ge_(1-x)および ²⁸Si_x²⁸Sn_(1-x)の MD 計算結果、青色のプロットが 原子量と結合ポテンシャルの両方を再現した ²⁸Si_x⁷³Ge_(1-x), ²⁸Si_x¹¹⁹Sn_(1-x)の MD 計算結果、橙色 のプロットが先行研究である時間独立ボルツ マン輸送方程式を用いた ²⁸Si_x⁷³Ge_(1-x), ²⁸Si_x ¹¹⁹Sn_(1-x)の計算結果[2]である。原子量のみを変 化させた場合の計算結果は、Si 単体結晶の熱伝 導率と比較して 97~99%の低下率を示してい る。一方、原子量を揃えて結合ポテンシャルの みを変化させた場合においても熱伝導率は低 下したが、低下率は86~94%程度にとどまった。 熱伝導率低下はフォノンの質量散乱のみでほ ぼ説明可能であるが、結合ポテンシャルの違い だけでもある程度の熱伝導率低下を説明でき るという点は興味深い。

Fig. 2 に MD 計算によって求めた ²⁸Si_(1-x)⁷³Si_x, ${}^{28}Si_x{}^{28}Ge_{(1-x)}, {}^{28}Si_{(1-x)}{}^{73}Ge_x のフォノン分散関係を$ 示す。原子量の違いと結合ポテンシャルの違い の両方を再現した場合、原子量のみを変化させ た場合のいずれにおいても、フォノン分枝が同 程度ブロードニングしている。一方、原子量を 揃えて結合ポテンシャルのみを変化させた場 合はほとんどブロードニングが生じておらず、 また当然のことながら光学フォノン分枝が Si-Siモードしか観測されない。このことから、混 晶のフォノン分散関係の概要は結合ポテンシ ャルの違いよりも原子量の違いでほぼ決まる と言える。以上から、IV 族混晶の格子熱伝導率 を議論する限りにおいては、元素の組み合わせ による結合ポテンシャルを考慮しなくても、質 量散乱のみで十分であることを結論できる。 本研究は、JST-CREST (JPMJCR15Q7)、JSPS-特別研究員 奨励費(15J07583)により補助を受けたものである。 [1] S. N. Khatami et. al., Phys. Rev. Appl. 6, 014015 (2016). [2] M. Tomita et. al., SSDM, 2017, p. 551.

