

理論と実験による極近接場熱輸送機構の解明

Theory and Experiments of Extreme Near-Field Heat Transfer

ユタ大学	徳永 拓朗
派遣期間	2020年4月1日～2021年3月31日
研究機関	Department of Mechanical Engineering, University of Utah, Salt Lake City, UT 84112-9049, United States
研究指導者	Prof. Mathieu Francoeur and Prof. Keunhan Park

Near-field radiation, a regime where surfaces are separated by sub-wavelength vacuum gaps, exceeds the far-field blackbody limit owing to tunneling of evanescent electromagnetic waves. Near-field radiation predictions via fluctuational electrodynamics have been experimentally validated down to vacuum gaps of ~ 10 nm. Between ~ 10 nm down to contact, however, there is a transition regime where all heat carriers, namely electromagnetic waves, phonons and electrons, can contribute to thermal transport. The physics underlying this transition regime, called the extreme near-field heat transfer regime, is not well understood. Therefore, this research provides theoretical and experimental investigations of extreme near-field heat transfer. A comprehensive theoretical framework for modeling extreme near-field heat transfer is developed, combining fluctuational electrodynamics, the atomistic Green's function method, and the Wentzel-Kramers-Brillouin approximation for near-field radiation, phonon transport, and electron tunneling, respectively. The framework is used for interpreting our experiments between silicon and platinum surfaces and prior experiments between gold surfaces. For capturing the transition from near-field radiation to conduction at contact in a precise manner, phonon transport between silicon surfaces separated by a vacuum gap is modeled by combining first-principles calculations of interatomic force constants and the three-dimensional atomistic Green's function method. The outcomes of this research shed light on the physics of extreme near-field heat transfer by explaining the transition mechanism of fundamental heat transfer modes from near-field radiation to conduction at contact.

研究目的

真空層で隔てられた二物体間の熱輸送は、真空層厚さがマクロスケールの場合遠方場輻射(Far-field radiation)で記述される。遠方場輻射の熱輸送キャリアは空間を伝搬する電磁波(propagating wave)である。二物体間距離が電磁波代表波長(室温で約 ~ 10 μm)を下回ると、物体表面に滞在するエバネッセント波(Evanescent wave)が熱輸送に参加する。Propagating wave と Evanescent wave による熱輸送は近接場輻射(near-field radiation)と呼ばれる。近接場輻射の理論は変動電磁気学(Fluctuation electrodynamics)により確立されておりこれによる理論予測は実験と良く一致する。2021年現在二物体間距離 ~ 7 nm まで、変動電磁気学による近接場輻射の理論予測と実験結果の一致

が報告されている [1]。近年、二物体間距離が数 nm を下回る熱輸送実験にて変動電磁気学の予測を数桁上回る熱輸送量が報告された。この距離領域は極近接場(Extreme near field)と呼ばれ、近年の理論研究は極近接場にて電磁波に代わりフォノンが支配的な熱輸送キャリアとなることを示した [2]。真空層厚さが数ナノメートル～オングストロームオーダーになると二物体の表層原子が真空層を越えて相互作用し、この相互作用を通してフォノンが伝搬するという仕組みである。これまで極近接場の熱輸送実験は三例報告されているが [3-5]、実験と理論を同時に報告した研究例はない。またこれらの実験は変動電磁気学による近接場輻射で解釈される/されない結果となっており一貫していない。更に極近接場のフォ

ノン輸送理論は確立されておらず、多くのモデルが提案されているがその妥当性を実験により検証した報告例はない。このため極近接場熱輸送の物理は理論と実験共に良く分かっていない。本研究は厳密な極近接場フォノン熱輸送モデルを提案し、これを過去の実験及び我々の実験と比較することで極近接場熱輸送の物理を理解し、二物体間距離の減少に伴い輻射から伝導伝熱へと熱輸送が遷移する機構を解明する。

研究経過

先行研究より極近接場の熱輸送キャリアは電磁波、フォノン、電子とされている。これら熱輸送キャリアによる熱輸送をそれぞれ変動電磁気学、原子グリーン関数法、Wentzel-Kramer-Brillouin (WKB)法で計算した。これを先行実験研究(金表面間)と比較しそれらの物理解釈を行うと共に、我々の実験(シリコン-プラチナ表面間)との比較により理論と実験の妥当性検証、及び実験の理論解釈を行った。その後フォノン熱輸送モデルの改良を行い、これをシリコン表面間の極近接場熱輸送計算に適用した。以降「a. 金表面間」、「b. シリコン-プラチナ表面間」、「c. シリコン表面間」の極近接場熱輸送について報告する。研究時系列は b → a → c であるが、ここでは便宜上 a → b → c の順に報告する。

金表面間の極近接場熱輸送

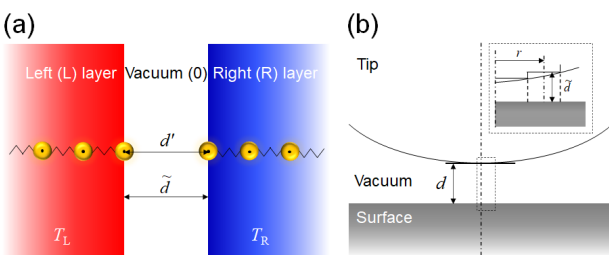


Figure 1. (a) One-dimensional heat transfer calculation of gold surfaces separated by a vacuum gap (b) Application of Derjaguin approximation for taking surface information into account based on the one-dimensional calculation.

図 1(a)の 1 次元系にて変動電磁気学、原子グリーン関数法、WKB 法で近接場輻射、フォノン輸送、電子透過による熱輸送計算を行い金表面間の先行実験研

究の物理解釈を試みた。先行実験研究の実験系は走査熱顕微鏡(scanning thermal microscope)で構成され、いずれも金チップ-金ヒーター間の熱輸送量測定結果が報告されている。図 1(a)より取得される物理量は熱輸送係数(heat transfer coefficient, h [$\text{W}/\text{m}^2\cdot\text{K}$])であり、実験値は熱コンダクタンス(G , [W/K])で与えられるため両者比較のために面積情報が必要である。図 1(b)の Derjaguin approximation により金チップと金ヒーター面を離散化し各離散面に 1 次元系を配置することで実験系の面積情報を考慮した。結果を図 2 に示す。

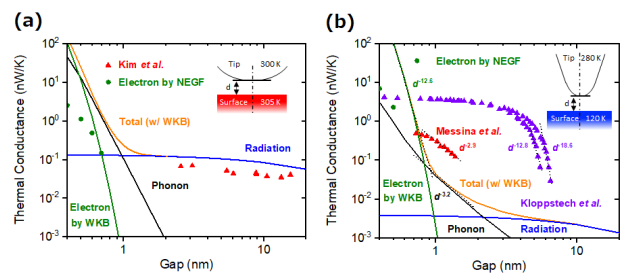


Figure 2. Theoretical predictions via near-field radiation (blue), phonon transport (black), electron tunneling (green), and total theoretical thermal conductance (orange). (a) Experiments by Kim *et al.* [3] (red) (b) Experiments by Klopstsch *et al.* [4] (purple) and Messina *et al.* [6] (red).

Kim *et al.* [3]の実験は近接場輻射により良く説明される(図 2(a))。実験のチップ-ヒーター間最小距離 d は ~ 2 nm でありフォノン輸送及び電子透過が支配的となるのは d が ~ 1 nm 未満の領域のためである。図 2(b)の Klopstsch *et al.* [4]の実験結果は不正確であることが同グループによる別論文(Messina *et al.* [6])により報告されている。Messina *et al.* [6]の熱コンダクタンスに対し我々の理論予測は 1 桁程度小さいものの熱輸送モードを特徴づける G - d 冪数の捕捉に成功し、これは Klopstsch *et al.* [4]の実験に対しても同様である。Messina *et al.* [6]の実験は真空層越しフォノン輸送と電子透過で説明される可能性がある。本成果は Physical Review B 誌に採択された [7]。

シリコン-プラチナ表面間の極近接場熱輸送

図 3(a)に示す Custom-built high-vacuum shear force microscope (HV-SFM)で極近接場熱輸送測定実験を実施した。図 3(b)に示す、プラチナナノヒーター(ヒーター)とシリコンチップ(チップ)表面間の熱輸送量を測定した。ヒーター位置はピエゾ素子でフィードバック制御されている。HV-SFMにてチップはヒーターに対して水平方向に振動するため、極小距離を隔てたチップーヒーター間の非接触保持を達成する。理論計算には金表面間の熱輸送計算に使用した理論モデルをそのまま適用した。

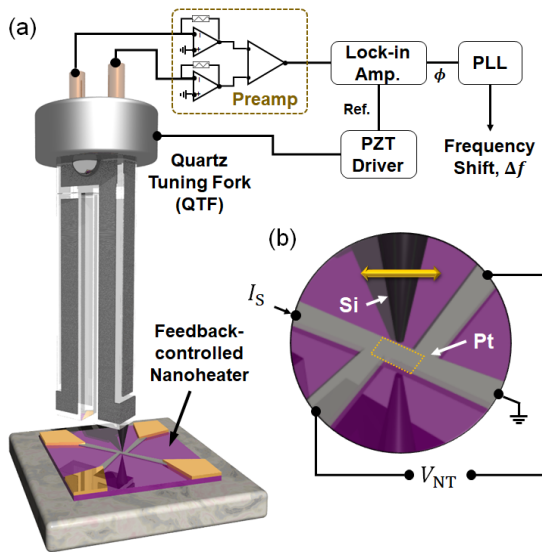


Figure 3. (a) Custom-built high vacuum shear force microscope. Silicon probe is mounted on the head of Quartz Tuning Fork. (b) Schematic of silicon probe and Platinum nanoheater.

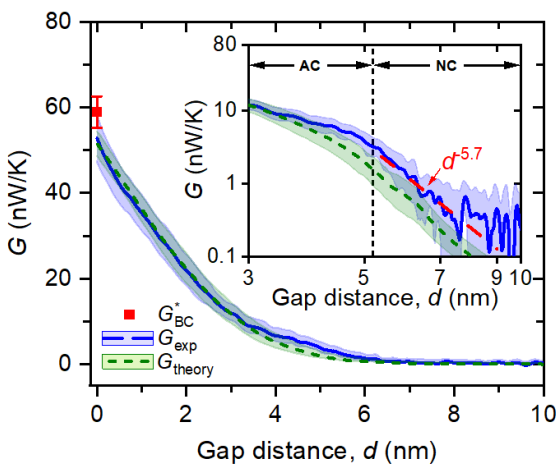


Figure 4. Experimental (blue) and theoretical (green) thermal conductance. The inset shows the liner-log scale. The vertical dashed line shows the border of asperity contact (AC) and non-contact (NC).

実験と理論による熱コンダクタンスはヒーターーチップ間距離 $d \sim 10$ nm から 0 nm (接触) まで良く一致する (図 4)。ヒーターとチップが非接触の領域 (NC regime) はバイアス電圧により誘起されたクーロン相互作用によるフォノン輸送、ヒーターとチップが一部接触した領域 (AC regime) 及び接触領域 ($d = 0$) は Lennard-Jones potential により記述される原子間相互作用起因のフォノン輸送が支配的な熱輸送モードであることがわかった。NC regime の G - d 冪数-5.7 は変動電磁気学では予測できず、対してフォノン輸送による冪数は-6.2 とこれを良く説明する。本成果は Physical Review Letters 誌査読中である [8]。

シリコン表面間の極近接場熱輸送

真空層を隔てたフォノン輸送理論にて、これまで計算系の原子間力定数の取得には経験的ポテンシャルモデルが使用されてきた。経験的ポテンシャルモデルには経験的変数が含まれており経験的変数の選び方によって最終出力である熱輸送計算結果が変わってしまう。そこで経験的変数に依らない熱輸送結果を取得するために第一原理計算に基づく理論構築を行った。密度汎関数法による原子間力定数を計算系の三次元格子振動を記述する三次元原子グリーン関数法 (three-dimensional atomistic Green's function method) の入力として使用することでフォノン透過関数及びフォノン熱輸送量を取得した。図 5 は真空層で隔てられたシリコン面を示し、本計算系は Left lead, Right lead, Device region に 3 分割される。Left lead から Device region を透過し Right lead に到達するフォノンのフォノン透過関数を計算し、フォノン熱輸送係数を取得した。

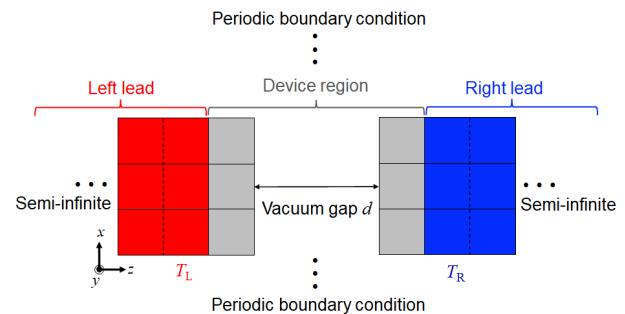


Figure 5. Definition of calculation system via the atomistic Green's function method for Silicon surfaces. The system is divided into the three regimes. The temperature of left lead T_L and right T_R is 305 K and 300

K, respectively.

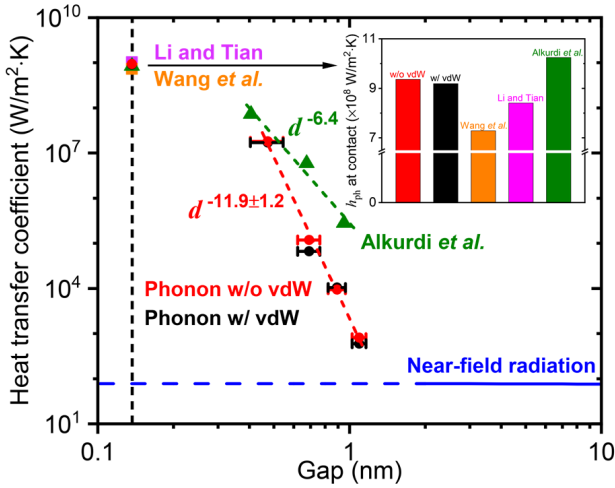


Figure 6. Theoretical phonon heat transfer coefficient with (w/, black) and without (w/o, red) van der Waals interaction in tandem with near-field radiation (blue). The prior works for vacuum gaps (green) and contact (green, pink, and orange) are also given together. The inset shows the results of contact. Near-field radiation below ~ 2 nm is shown with the dashed line due to the inconsideration of non-local effect for dielectric function.

図 6 に真空層越しシリコン表面間のフォノン輸送、及び近接場輻射による熱輸送係数 (heat transfer coefficient, h) を示す。シリコン表面間距離 $d > \sim 2$ nm では近接場輻射が支配的熱輸送モードである。 $d < \sim 1$ nm にてフォノン輸送が近接場輻射を上回る。 d の減少とともに h が増加する。Alkurdi *et al.* [9] のフォノン透過関数計算は格子動力学に基づき、真空層越し原子間相互作用計算は 11-5 Lennard-Jones potential による。経験的ポテンシャルモデルと経験的変数の選択が、我々の h - d 冪数及び h との乖離要因と考えられる。接触領域 ($d = 0$) にて我々の結果と先行研究結果は良く一致する。Wang *et al.* [10] と Li and Tian [11] はそれぞれ Diffuse Mismatch Model と原子グリーン関数法で h を取得した。我々の結果は第一原理計算による原子間力定数を原子グリーン関数法の入力とすることで取得された。このため真空層越しシリコン表面間の相互作用は表面シリコン原子同士の波動関数の重なりを表現する。波動関数の重なりが表面シリコン原子を繋ぐ橋となり、これを通じてフォノンが真空層を越えて伝搬する。

先行理論研究は van der Waals (vdW) 相互作用によ

る真空層越しフォノン熱輸送が極近接場熱輸送の支配モードとなることを示した [12]。この主張を検証するため Grimm の方法 [13] により密度汎関数法の交換相関汎関数 (exchange-correlation functional) に vdW 相互作用によるポテンシャルエネルギーの修正を加えることで vdW 相互作用込みの真空層越し原子間相互作用を取得し、フォノン熱輸送を計算した。vdW 相互作用の有無でフォノンによる h に大差はない。もともと vdW 相互作用は弱い相互作用であるため、より強い相互作用である波動関数の相互作用がこれを覆い隠したと考えられる。本成果は Physical Review B 誌に採択された [14]。

考察

本研究は理論と実験による極近接場熱輸送機構の解明を目的とした。極近接場における熱輸送モード (近接場輻射、フォノン熱輸送、電子透過) 理論を 1 次元モデルにより構築した。これに基づき先行実験 (金表面間) と我々の実験結果 (シリコン-プラチナ表面間) の物理解釈を行った。Kim *et al.* [3] の実験は近接場輻射により説明される。Messina *et al.* [6] の実験はフォノン熱輸送と電子透過により解釈される可能性がある。我々の実験結果はフォノン輸送により説明される。第一原理計算に基づくフォノン熱輸送モデルにより真空層で隔てられた表面間の波動関数の相互作用がフォノン熱輸送の原動力であることが示された。近接場輻射から伝導伝熱への熱輸送モードの遷移、すなわち電磁波からフォノンへの熱輸送キャリアの遷移は真空層越しの波動関数相互作用の始まりがきっかけであると考えられる。学術誌掲載済みの極近接場熱輸送実験例は今なお三例と少ないため、特に二物体間距離が ~ 2 nm を下回る距離領域の実験結果取得が本研究の次の進路である。プローブ-平板型の実験系は effective heat transfer area の定義が難しく、平板-平板型の実験系は物体間距離の制御が難しい。理論との比較に理想的な実験結果を取得するためには、数 nm 程度の真空層で隔てられた二平板間の距離をサブナノメートルオーダーで制御する技術開発が必要である。

参考文献

1. H. Salihoglu *et al.*, *Nano Lett.* **20** 6091 (2020)
2. V. Chiloyan *et al.*, *Nat. Commun.* **6** 6755 (2015)
3. K. Kim *et al.*, *Nature* **528** 387 (2015)
4. K. Kloppstech *et al.*, *Nat. Commun.* **8** 14475 (2017)
5. L. Cui *et al.*, *Nat. Commun.* **8** 14479 (2017)
6. R. Messina *et al.*, arXiv: 1810.02628v1 (2018)
7. T. Tokunaga *et al.*, *Phys. Rev. B* **104** 125404 (2021)
8. A. Jarzembki *et al.*, arXiv: 1904.09383v2 (2019)
9. A. Alkurdi *et al.*, *Int. J. Heat Mass Transf.* **158** 119963 (2020)
10. H. Wang *et al.*, *Mater. Trans.* **48** 2349 (2007)
11. C. Chen and Z. Tian, *Front. Phys.* **7** 6 (2019)
12. J. B. Pendry *et al.*, *Phys. Rev. B* **94** 075414 (2016)
13. S. Grimme, *J. Comput. Chem.*, **27** 1787 (2006)
14. T. Tokunaga *et al.*, *Phys. Rev. B* **105** 045410 (2022)
- 8-14, 2019.
4. Takuro Tokunaga, Amun Jarzembki, Keunhan Park, and Mathieu Francoeur, “Theoretical predictions of force-induced acoustic phonon transport between a silicon tip and a platinum surface separated by single-digit nanometer vacuum gaps,” ASME 2019 International Mechanical Engineering Congress & Exposition, Salt Lake City, UT, USA, November 8-14, 2019.
5. Takuro Tokunaga, Amun Jarzembki, Jacob Crossley, Jeonghoon Yun, Cedric Shaskey, Ryan A. Murdick, Inkyu Park, Keunhan Park, and Mathieu Francoeur, “Force-induced acoustic phonon heat transport across vacuum gaps: Theory,” 4th Thermal and Fluids Engineering Conference, Las Vegas, Nevada, USA, April 14-17, 2019.

研究の発表

口頭発表

1. Takuro Tokunaga, Masao Arai, Kazuaki Kobayashi, Shigeru Suehara, Wataru Hayami, Takuma Shiga, Keunhan Park, and Mathieu Francoeur[†], “First-principles calculations of acoustic phonon tunneling between silicon surfaces,” 7th Thermal and Fluids Engineering Conference, Las Vegas, NV, USA, April-May, 2022. [†] : Presenter
2. Takuro Tokunaga, Masao Arai, Kazuaki Kobayashi, Shigeru Suehara, Wataru Hayami, Takuma Shiga, Keunhan Park, and Mathieu Francoeur, “First-principles calculations of acoustic phonon tunneling,” ASME Summer Heat Transfer Conference, Virtual Conference, June 16-18, 2021.
3. Takuro Tokunaga, Amun Jarzembki, Keunhan Park, and Mathieu Francoeur, “Extreme near-field heat transfer between gold surfaces,” ASME 2019 International Mechanical Engineering Congress & Exposition, Salt Lake City, UT, USA, November 8-14, 2019.
- 誌上発表
1. Takuro Tokunaga, Masao Arai, Kazuaki Kobayashi, Shigeru Suehara, Wataru Hayami, Takuma Shiga, Keunhan Park and Mathieu Francoeur, “First-principles calculations of phonon transport across a vacuum gap” *Phys. Rev. B* **105** 045410 (2022)
2. Takuro Tokunaga, Amun Jarzembki, Takuma Shiga, Keunhan Park and Mathieu Francoeur, “Extreme near-field heat transfer between gold surfaces” *Phys. Rev. B* **104** 125404 (2021)
3. Amun Jarzembki[†], Takuro Tokunaga[†], Jacob Crossley, Jeonghoon Yun, Cedric Shaskey, Ryan A. Murdick, Inkyu Park, Mathieu Francoeur and Keunhan Park, “Force-induced acoustic phonon transport across single-digit nanometer vacuum gaps”, under review *Physical Review Letters*, arXiv:1904.09383, [†] : Those authors contributed equally to this work