

第一原理分子動力学法を用いた非調和力定数の決定と熱伝導計算への応用
Determination of anharmonic force constants with first-principles molecular dynamics
and the applications to thermal conductivity calculations

只野央将、合田義弘、常行真司

T. Tadano, Y. Gohda and S. Tsuneyuki

東京大学理学系研究科物理学専攻

Department of Physics, The University of Tokyo, Hongo, Tokyo 113-0033

熱伝導率はマイクロ・ナノデバイスの性能を左右する重要な物理量の一つである。例えば熱電変換材料の性能指数 $ZT = \sigma S^2 T / \kappa$ は熱伝導率 κ が低いほど高くなるため、熱伝導率が低下するようにナノ構造化を施すと性能が向上することが期待される。実際にシリコンナノワイヤでは表面おけるフォノン散乱の影響で熱伝導率が低くなり、 ZT が大幅に向上することが報告され注目を集めている[1]。

固体において格子熱伝導率を支配するのはポテンシャルの非調和性である。非調和の力定数(IFC)を第一原理的に計算することで格子熱伝導率を非経験的に予測することが可能であり、主にバルクにおいて成功を収めている[2, 3]。調和および非調和 IFC を第一原理的に見積もる手法としては密度汎関数摂動論(DFT)と直接法がある。直接法ではセル内の原子を平衡位置から Δu だけ微小変位させ、その際に各原子に働く力との対応から IFC を決定するため、既存の第一原理計算パッケージと組み合わせることが容易であるという利点がある。ただし実用上は変位 Δu の大きさを適切に選択しなければならず、また、非調和項を決定するには複数の原子を同時に変位させる必要があるなど様々な困難が伴う。

我々は、これらの困難を解決すべく、第一原理分子動力学法(FPMD)を用いた別の決定手法を提案する。この手法では、FPMD を用いて高温での原子変位と力のデータをサンプルし、高次非調和項まで含んだモデルでフィッティングを行う。FPMD ではセル内のすべての原子が平衡位置から変位しているため、得られたデータから任意次数の IFC を決定することが可能である。バルクシリコンに対して本手法の妥当性を検証した結果、明示的に変位を与えて決定した場合とほぼ同等の非調和 IFC が得られることを確認した。また、得られた IFC から構成したモデルポテンシャルを非平衡 MD と組み合わせて格子熱伝導率の計算を行い、IFC の妥当性を確認した。さらに、バルクシリコンという比較的単純な構造においても、高温でのモデルの安定性のためには 4 次非調和項までではなく 6 次非調和項まで考慮する必要があることを明らかにした。本手法は、非調和項の決定過程効率化に有用であると期待される。

[1] A.I. Boukai, Y. Bunimovich, J. Tahir-Kheli, J. K. Yu, W. Goddard, and J.R. Heath, *Nature* **451**, 168 (2008).

[2] D. Broido, M. Malorny, G. Birner, N. Mingo, and D. Stewart, *Applied Physics Letters* **91**, 231922 (2007).

[3] K. Esfarjani, G. Chen, and H. Stokes, *Physical Review B* **84**, 085204 (2011).