強磁場を印加されたイオン結晶内のフォノン輸送 Phonon Transport in Ionic Crystal in the Presence of Strong Magnetic Field

○ 安原 崇弘 (九大院) 正 高橋 厚史 (九大工)

Takahiro Yasuhara¹ and Koji Takahashi^{1,2,3}

¹ Department of Aeronautics and Astronautics, Kyushu University, 744, Motoooka, Nishi-ku, Fukuoka

² International Institute for Carbon-Neutral Energy Research (WPI-I2CNER), Kyushu University, Fukuoka

³ JST, CREST, Kyushu University, Fukuoka

The classical molecular dynamics simulation was carried out to study the effects of the strong magnetic field on the phonon transport properties of ionic crystals. Heat transport analysis for the alkali halide thin film model is conducted using nonequilibrium direct method. Strong magnetic flux density ($\sim 10^6$ T) is applied perpendicularly to the direction of temperature bias. Thermal conductivity in the thickness direction decreases with increasing the magnetic flux density at low-temperature region (15K and 115K). In order to reveal the mechanism of change in thermal conductivity, spectral energy density (SED) is calculated and discussed.

Key Words: Phonon transport, Magnetic field, Ionic crystal

1. はじめに

近年、原子レベルで熱伝導を制御する技術が盛んに研究されている。例えば、二種類の異なる非線形一次元振動子を連結させた系において、熱流束がある一方に優位になる熱整流作用が理論的に示された⁽¹⁾。これは二種類の領域でのフォノン状態密度のミスマッチに起因し、ナノ熱ダイオード素子という革新的な熱制御デバイスの可能性を示唆している。分子動力学法解析により、直径の異なる SWNT を結合させた系⁽²⁾や、SWNT の軸方向半分の領域に空孔欠陥を導入した系⁽³⁾において、熱整流作用が観測され、同様の理論が現実系で適用可能であることがわかってきた。また、カーボンナノチューブ(CNT)とボロンナイトライドナノチューブ(BNNT)に堆積物による質量勾配を付加した試料においては、熱整流作用が実験的に観測された⁽⁴⁾。さらに、上述の一次元振動子モデルに基づき、熱トランジスタ⁽⁵⁾等の新たなデバイスが理論的に提案されている。

質量勾配や空孔欠陥等により、結晶の構造自体を変化させることで、固体材料に熱整流や熱のスイッチング等の新たな機能を付加する方法は数多く提案されている。一方で、熱輸送に影響する外力場を用いて、非接触で熱輸送を制御する方法に関する研究例は少ない。最近の一次元量子スピン系に対する非平衡 Green 関数法解析⁽⁶⁾によると、外部磁場強度を調節することで、スピン熱輸送を非接触スイッチングできると報告されている。また、イオン結晶に外部磁場を印加することで、温度勾配と磁束密度に垂直な方向に熱流束が生じるフォノンホール効果⁽⁷⁾について、多くの調査例がある。しかし、磁場を用いた非接触でのフォノンの整流やスイッチングを対象とする研究は、報告例が無い。

そこで、磁場を用いてフォノン輸送を非接触制御することを目的とし、結晶内の各粒子が電荷を有することから、磁場の効果をより受けやすいであろうイオン結晶を研究対象とした。本研究では、古典分子動力学法を用いた解析により、特にアルカリハライド結晶に強い磁場を印加したときの格子振動特性の変化を調査する。

2. 計算手法

図 1 に非平衡分子動力学法の計算系を示す。fcc 格子を持つ NaCl 型の結晶構造とした。基本セルのサイズは $L_x=6.18\text{nm}$, $L_y=L_z=2.25\text{nm}$ とし、 y と z 方向に周期境界条件

Fig.1 Nonequilibrium MD simulation system.

を適用することで、薄膜状の結晶を模擬した。 x 方向両端の結晶面は固定境界とし、左右端から 2 列目の面に phantom 粒子を配置し、Langevin 法による温度制御を行った。

粒子間相互作用は、式(1)に示すアルカリハライド結晶の物性を再現できる Born-Mayer-Huggins-Tosi-Fumi(BMHTF)ポテンシャル⁽⁸⁾を用いた。使用した NaCl 結晶用パラメータの値を表 1 に示す。

$$\phi_{ij}(r_{ij}) = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} + A_{ij} b \exp\left(\frac{\sigma_i^0 + \sigma_j^0 - r_{ij}}{\rho}\right) - \frac{c_{ij}}{r_{ij}^6} - \frac{d_{ij}}{r_{ij}^8} \quad (1)$$

近接力の計算についてはカットオフ距離を最近接粒子間距離の 2.5 倍に設定し、クーロン力の計算には Ewald 和の方法⁽⁹⁾を用いた。 z 方向に定常な磁束密度 $\mathbf{B}$ を印加した。粒子を点電荷と仮定し、式(2)のローレンツ力を各粒子に外力として与えることで、磁場の効果を模擬した。

$$\mathbf{f}_i = q_i \mathbf{v}_i \times \mathbf{B} \quad (2)$$

時間刻みは 5fs とし、Velocity Verlet algorithm を用いて運動方程式の数値積分を行った。 $t=0\text{s}$ において全粒子を平衡位置に配置し、Maxwell の速度分布を与えて計算を開始した。定常状態移行まで 0.5ns の緩和計算の後、2ns 間のデータを用いて解析を行った。

Table1 Parameters of BMHTF potential for Na⁺ and Cl⁻

σ_+ (pm)	σ_- (pm)	ρ (pm)	c_{++}	c_{--} (10^{-79}Jm^6)	c_{+-}	d_{++}	d_{--} (10^{-99}Jm^8)	d_{+-}
117.0	158.5	31.7	1.68	116.0	11.2	0.8	233.0	13.9

A : Pauling constant, $b = 0.388 \times 10^{-19}\text{J}$

+: cationic species, -: anionic species

3. 結果と考察

3.1 熱伝導率

定常状態移行後の x 方向各結晶面における 2ns 間の平均温度分布を図 2 に示す。また、phantom 粒子に与えたエネルギー累積値の時間推移を図 3 に示す。図 2 の結晶中央付近ではほぼ線形温度分布になっており、グラフの傾きから温度勾配 $\partial T/\partial x$ が得られる。さらに、図 3 より計算開始後約 0.1ns 以降では、熱流の累積値が直線的に変化しており、定常状態が実現できていることを示している。グラフの傾きを断面積 $L_y \times L_z$ で割って得られる値を x 方向の熱流束 Q とした。得られた温度勾配と熱流束を用いて、式(3)に示すフーリエの法則から x 方向の熱伝導率を直接求めた。

$$Q = -\kappa_x \frac{\partial T}{\partial x} \quad (3)$$

図 4 に磁束密度を変化させたときの熱伝導率の結果を示す。磁束密度の増加と共に熱伝導率の値が減少した。また、磁束密度の増加に伴う熱伝導率の変化率は低温でより顕著になった。平均温度 215K では磁束密度の増加による熱伝導率の変化はほとんど見られない。

Fig.2 Temperature distribution along x direction for Fig.1.

Fig.3 Energy budgets from phantom particles at each side.

Fig.4 Magnetic flux dependence of thermal conductivity.

3.2 格子振動解析

磁場の効果を抽出するため、各粒子速度をフーリエ変換し、式(4)の Spectral Energy Density(SED)を算出した。

$$E(\omega) = \left| \int \dot{\mathbf{u}}(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (4)$$

図 5(a),(b)に、 $B_z = 2 \times 10^6$ T の磁束密度を印加する前後の SED の結果を、平均温度 15K と 215K に対してそれぞれ示す。温度 15K では、磁束密度を印加することで、10THz までの周波数域において SED のピーク値が全体的に減少した。一方 215K の場合、SED の分布に大きな変化は見られない。これは、低温においてのみ熱伝導率が変化することを示しており、図 4 の結果と一致する。なお、温度 15K、 $B_z = 0$ T のときの SED 分布は、過去の格子動力学による状態密度の計算例⁽¹⁰⁾と良い一致を示した。さらに、両温度において、5.2~5.6THz 付近に新しいピークが出現している。このピークには温度依存性が無いことから、磁場によって励起された新たなモードであると考えられる。

以上の結果から、15K の低温では粒子間相互作用がローレンツ力による拘束を受けることで、SED の分布が全体的に減少し、熱伝導率が低下する。215K の高温では磁場の効果が粒子間相互作用に埋もれて、熱伝導率に変化が見られなくなると考えている。

4. まとめ

古典分子動力学法解析により、NaCl 結晶に 10^6 T オーダーの強磁場を印加したとき、磁束密度の増加に伴い熱伝導率が減少した。15K の低温において、外部磁場により最大で約 70% の熱伝導率低減効果が得られた。格子振動解析の結果から、低温では 5.2~5.6THz 付近を除く周波数域において、SED の分布が減少することが原因であると考えている。

Fig.5 Spectral energy density at (a)15K and (b)215K.

参考文献

- (1) B. Li, et al., Phys. Rev. Lett., **93** (2004), 184301.
- (2) G. Wu, et al., Phys. Rev. B, **76** (2007), 085424.
- (3) K. Takahashi, et al., Jpn. J. Appl. Phys., **49** (2010), 02BD12.
- (4) C. W. Chang, et al., Science, **314** (2006), 1121.
- (5) B. Li, et al., Appl. Phys. Lett., **88** (2006), 143501.
- (6) Y. Yan, et al., Phys. Lett. A, **375** (2011), 4074.
- (7) B. K. Agarwalla, et al., Eur. Phys. J. B, **81** (2011), 197.
- (8) N. Galamba, et al., J. Phys. Chem. B, **108** (2004), 3658.
- (9) M. Kawata, et al., Chem. Phys. Lett., **340** (2001), 157.
- (10) V. Nusslein, et al., Phys. Stat. Sol., **21** (1976), 309.