

機械学習を用いた極小熱伝導率を有する 断熱薄膜の設計と開発

SATテクノロジー・ショーケース2019

■ はじめに

断熱材料は、建築や電子機器、発電プラント、航空機など、日常生活から産業応用まで幅広く利用されており、省エネルギー社会を構築するための基盤材料である。伝統的な断熱材料は、空気を多く含む多孔質材料が主流であるが、強度が弱い、他の材料に充填したり、封じたりして利用することが多い。近年、エンジンの燃焼室側壁やピストン、電子デバイス部品などの表面に直接成膜できる、耐熱性と強度を有する機能性熱遮蔽コーティングの需要が増えつつある。ただし、無機材料単体での断熱性能は良好ではないため、それらの複合化やナノ構造制御による断熱性向上が必要であった。しかしながら、材料の複合化には膨大な組み合わせが可能であり、実験或いはシミュレーションの手法だけで一つずつ検証することは困難であった。本研究では、機械学習の手法を利用して、膨大な材料組合せから、界面熱抵抗の高い材料組合せを設計し、極小熱伝導率を有する無機複合薄膜を実現した。

■ 活動内容

1. 界面熱抵抗の予測と高界面熱抵抗材料組合せの設計

材料の相界あるいは粒界では、フォノンと電子が散乱されたり、反射されたりするため、熱抵抗が生じる。本研究では、界面熱抵抗を利用してナノ複合材料の熱伝導率を低減させることを目的とする。高界面熱抵抗の材料組合せを探索するためには、まず、界面熱抵抗を高精度に予測する手法が必要である。しかし、界面熱抵抗には関連要因が多くある。例えば、界面両側材料の特性や結晶構造などの物理的な要因、界面の化学結合や新相生成など化学的な要因、界面の作製条件や構造など材料的な要因などが挙げられる。既存の物理モデルは、物理的な要因しか考慮されていないので、満足できる精度が得られなかった。それらの要因を全て考慮した物理モデルの構築は不可能であるので、我々は、材料データに基づいた機械学習のモデリング手法を利用した。

まず、科学論文から、界面熱抵抗の実験データを収集した(図1)。54材料から構成された456界面サンプルの温度依存性を含めた1317点の界面熱抵抗値を収集した。図1に示したように、電子主導の金属/金属界面の熱抵抗は、その他のフォノン主導の界面熱抵抗より低い傾向があるので、機械学習ではその部分のデータを対象外とした。

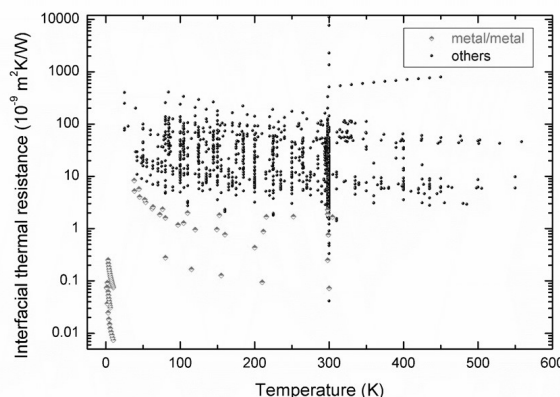


図1 科学文献から収集した界面熱抵抗の実験データ

物理的な記述子を選定するために、まず、熱伝導に関連する両側材料の物性や結晶構造など、入手できるデータを全て収集し、それらに対して、相関性解析と主成分解析を行い、比較的に独立しており、且つ、入手しやすさとデータ信頼性を考慮して、最終的に、密度、比熱、融点、単位胞体積の四つを選択した。化学的な記述子は、界面での化学結合のしやすさや化合物の安定性などを表す記述子である。これには材料化学の基本理論に基づいて、原子番号、原子量、電気陰性度、イオン化ポテンシャルと界面構成材料の結合エネルギーを選択した。材料的な記述子は、材料作製条件に関するものと想定しているが、論文から入手可能なデータは限られているので、最終的に、膜厚と中間層の有無を記述子として採用した。

このような記述子セットと界面熱抵抗の実験データを利用して、界面熱抵抗予測の機械学習モデルを構築した。図2に、アンサンブル回帰木の機械学習手法を用いた界面熱抵抗の予測値と実験値の相関性を示す。予測精度は、約90%である。このモデルを利用して、2000種類以上の材料組合せの界面熱抵抗を予測し、その中から、界面熱抵抗の高い候補をランキングした。さらに、成膜しやすさや、界面安定性などの要素を統合的に考慮して、最終的に、Bi/Siの材料組合せに対して、実験検証を行うことにした。

2. Bi/Siナノ複合薄膜の試作と特性評価

NIMS独自開発のコンビナトリアル・スパッタコーティング装置を利用して、Bi/Si複合膜の試作を行った。Si基板の

代表発表者 徐 一斌(しゅう いーびん)
所 属 物質・材料研究機構
情報統合型物質・材料研究拠点
問合せ先 〒305-0047 つくば市千現1-2-1
TEL: 029-859-2258
XU.Yibin@nims.go.jp

■キーワード: (1) マテリアルズインフォマティクス
(2) 断熱材料
(3) 界面熱抵抗

■共同研究者: Wu Yen-Ju, Fang Lei, 佐々木道子、後藤真宏

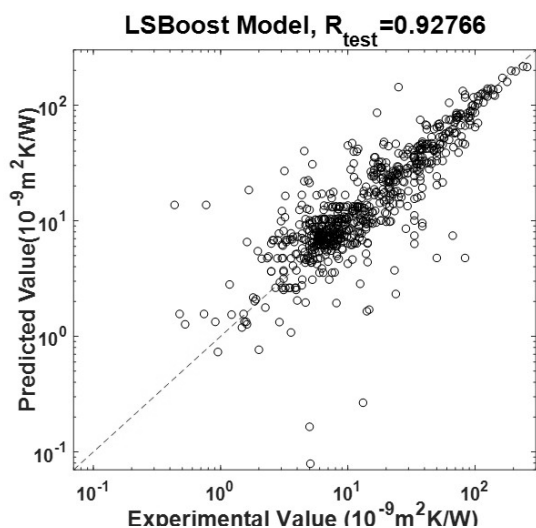


図2 界面熱抵抗の機械学習予測値と実験値の相関性

上に、厚さ数ナノメートル以下のBiとSi層を交互に積み重ね、各層の厚さや、Bi/Siのトータル体積比、RFパワーなどを制御することによって、ナノ構造を徐々に変化した複数のサンプルを作製した。X線解析とTEM解析の結果から、作製した材料は、アモルファスSiのマトリックス中に、Biのナノ結晶を散りばめた構造を有する複合材料であることが分かった。一部のサンプルのTEM写真を図3に示す。スパッタ条件によって、Bi粒子の形状や、サイズが異なることが分かった。また、NIMSにて開発した周波数ドメインサーモリフレクタンス方式の熱伝導評価装置を用いて、薄膜の熱伝導率を測定した。全てのサンプルの熱伝導率は、0.45 W/mK以下であり、最も低いものは、0.16 W/mKであった。図4には、本研究で開発した材料の熱伝導率と既知の無機複合材料および高分子材料の熱伝導率の比較を示す。今回の材料は、無機複合材料では最小で、高分子並みの熱伝導率を有していることが分かる。

アモルファスSiと結晶Biの熱伝導率は、それぞれ、約1W/mKと8W/mKであり、ほかの材料に比べて、特に低いわけではない。その複合材料の熱伝導率は、その他の材料組合せより小さいことは、高い界面熱抵抗の影響と考えられる。よって、本研究で開発した実験データに基づいた機械学習モデルは、界面熱抵抗の設計に有効であることが検証できた。

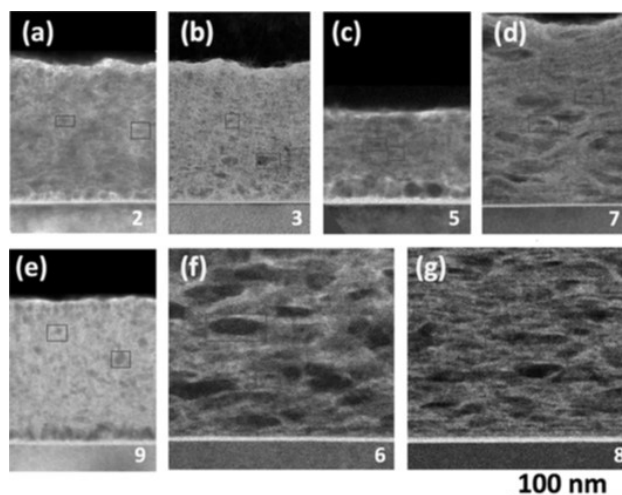


図3 Bi/Si ナノ複合膜の TEM 写真。(c)は、熱伝導が最も低い(0.16 W/mK)の試料である。

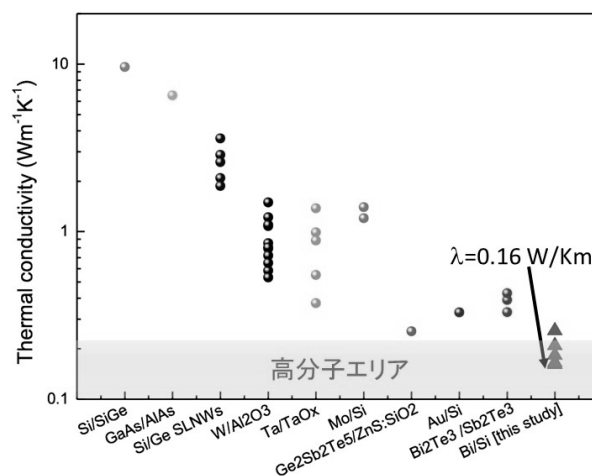


図4 本研究で開発した材料の熱伝導率と既知の無機複合材料および高分子材料の熱伝導率の比較

■関連情報等(特許関係、施設)

- [1] 徐一斌 ウーイエンルー 後藤真宏 佐々木道子 特願 2018-1587
- [2] Y. Wu, et al., ACS Appl. Nano Mater., 1, 7, 3355-3363, DOI: 10.1021/acsnm.8b00575