九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

分子動力学シミュレーションを用いたナノ粒子の低温焼結特性に関する数値解析

松原，典恵

https://doi.org/10.15017/1785394

出版情報：九州大学，2016，博士（工学），課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済

（様式２）

氏　　名　：松原　典恵

論 文 名　：分子動力学シミュレーションを用いたナノ粒子の
　　低温焼結特性に関する数値解析

区　　分　：甲

論　文　内　容　の　要　旨

環境を保護するため、低 CO_2 化はあらゆる分野において喫緊の解決が社会的要請である重要な課題となっている。パワーデバイスにおいては、この課題に対処するため、Si の代わりに高温まで動作可能な SiC 等のワイドギャップ半導体素子の適用が検討され、実用化の目途がたちつつある。しかし、素子のみならず、デバイス全体が高温に耐えうる必要があり、現在大きな問題となっているのは、従来のはんだより耐熱性が高く、かつ、接合における加熱の影響を回避するため、より低温で接合可能な素子接合材料の創出である。その候補材として金属ナノ粒子が着目されているが、まだ、焼結メカニズムの基礎知見が明らかにされておらず、実用化に多くの課題を残している。本論文では、分子動力学(MD)シミュレーションを用いて、金属ナノ粒子の低温焼結挙動を基礎的に解明することを目的とした。本論文は、以下の５章から構成されている。

第１章では、まず、上記 SiC パワーデバイスの社会的ニーズおよび技術背景を説明し、ついで、従来の素子接合材料の代わりとなる金属ナノ粒子接合材料研究に関する従来知見を述べた。さらに、古典力学に基づいた計算機シミュレーションの概論を述べた後、MD シミュレーションで用いる原子間ポテンシャルと温度制御方法を体系的に述べた。最後に、本研究の目的について論じた。

第２章では、MD シミュレーションを用いて金属ナノ粒子の焼結挙動を解明するに先立ち、まず、ナノ粒子と同質材料であるバルク Fe の融点を求めることを目的とした。MD シミュレーションを用いる場合、計算機能力の限界のため、融点を正確に求めることが難しく、実測値よりも高く見積もられる傾向にある。そこで、温度勾配を有する MD セル内に発生する固液界面位置から固液相転移温度を見積もる新たな手法を用いて計算を行った。その結果、温度勾配に沿って自由表面から融解が進行することを確認でき、また、ポテンシャルエネルギーが安定した後の固液界面位置から、バルク Fe の融点は 2635 K であることを明らかにした。

第３章では、MD 計算を用いて、第２章で求めたバルクの融点以下で進行するナノ粒子の融解挙動を解明することを目的とした。粒径 12 nm（原子数 65 個）から粒径 240 nm（原子数 614203 個）の Fe ナノ粒子を加熱し、ナノ粒子の粒径とその融点との関係を調べ、融点降下現象を確認した。また、粒子の融解が粒子表面を起点に、内部に向かって均等に進行する現象を新たに見出した。

第４章では、第３章で求めたナノ粒子の粒径で決定される融点降下現象を裏付けるため、融解層の自己拡散係数を MD シミュレーションにより数値解析することを目的とした。粒径 4 nm あるいは 24 nm の粒子 1 個について、粒子を構成する原子それぞれの自己拡散係数に着目して解析し、粒子の中心からの距離（半径方向位置）に対する原子の平均自己拡散係数を求めた。また、平均自己拡散係数の加熱温度依存性を調べた。その結果、いずれの加熱温度においても、粒子内部に比べ粒子

表層部の平均自己拡散係数は急激に大きくなることが明らかとなった。また、融点以上の温度で加熱した場合、原子の平均自己拡散係数は液相の自己拡散係数に相当する 10^{-5} cm^2/s オーダーであり、一方、融点以下の温度で加熱した場合、粒子内部の原子の平均自己拡散係数は 10^{-9} ～10^{-8} cm^2/s オーダーで、粒子表層部は 10^{-4} cm^2/s のオーダーとなった。この結果から、ナノ粒子の低温焼結性は、内部に比べて4桁以上大きな液相同等の自己拡散係数を有する表層部の原子の拡散に支配されると結論された。

第5章では、粒子の焼結挙動をMDシミュレーションにより再現し、ナノ粒子の低温焼結メカニズムを解明することを目的とした。第4章では1原子を対象としたが、本章では実際の溶接材料開発の指針を得るため、粒径20 nmのFe粒子2個を対象として T/Tm = 0.896において加熱を行った。その結果、第4章の1原子のMDシミュレーションと同様に、粒子内部と表層部において原子の自己拡散係数に差が生じ、粒子表層部のみ融解している現象、さらに、低温焼結性の支配因子である表層部を通じて粒子間に結合が生じることが確認できた。また、シミュレーションより得られた粒子間結合部の成長割合を用いて、ネック成長次数と焼結時間との関係を調べたが、ネック成長次数の4乗が焼結時間に比例する結果となり、従来の単一の固相拡散機構では説明できなかった。本章で得られたネック成長速度の結果、および、第4章で得られた、融点以下の温度域で加熱したナノ粒子表層部の自己拡散係数が液相と同等である結果より、数十 nm のナノ粒子の焼結メカニズムは、（1）粒子表層部の融解、（2）粒子表面の融解層における蒸発・凝集による粒子間接合形成およびネック成長、（3）体積拡散、の順で生じているとの結論が導かれ、とりわけ、（1）および（2）がナノ粒子の低温焼結を特徴づけていることを説明した。

第6章において本研究を総括し、主たる結論を述べた。

本研究のMDシミュレーションによる数値解析に基づき得られたナノ粒子の焼結メカニズムの基礎知見は、より低温で接合可能な高温動作SiC素子の接合材料の創出に繋がる。