

ルチル型 TiO₂ 単結晶への周期的な面欠陥導入に伴う熱伝導率の変化

Change in thermal conductivity of rutile-type TiO₂ by introducing periodic planar faults

名大¹, 産総研², 神戸大³, 京大⁴
○(M1)小坂 直輝¹, 八木 貴志², 田中 克志³, 乾 晴行⁴, 田川 美穂¹, 宇治原 徹^{1,2}, 原田 俊太¹
Naoki Kosaka¹, Takashi Yagi², Katsushi Tanaka³, Haruyuki Inui⁴, Miho Tagawa¹,
Toru Ujihara^{1,2}, Shunta Harada¹
Nagoya Univ.¹, AIST², Kobe Univ.³, Kyoto Univ.⁴
E-mail: kosaka@unno.material.nagoya-u.ac.jp

はじめに 近年、熱伝導の高度な制御を目指し、フォノンニック結晶の研究が行われている。フォノンニック結晶とは、弾性率の周期的変調を含むナノ構造体のことであり、微細加工により作られたフォノンニック結晶では、100 nm 程度の周期構造により、1~100 GHz の低周波数帯のフォノンバンドを制御することができる。これまでにフォノンニック結晶により、4 K において熱伝導が低下することが報告されており、波動性を利用した熱伝導制御が実証されている[1]。室温において、フォノンニック結晶による熱伝導制御を実現するためには、より短い周期構造によって高周波数のフォノンの熱伝導を抑制し、フォノンニック結晶で制御できる低周波数のフォノンが熱伝導を担う材料が必要となる[2]。そこで我々は、周期的な面欠陥を含む Magneli 相酸化チタン(TiO_{2-δ})に着目した。Magneli 相酸化チタンは、酸素欠損量によって面欠陥の周期を変化させることが可能であり、完全性の高い周期構造を有することが明らかとなっている[3,4]。本研究では酸化チタンへの周期的な面欠陥導入に伴う熱伝導率の変化を [001]_{rutile}, [100]_{rutile} について調べた。

実験方法 ベルヌーイ法により作製されたルチル型 TiO₂ 単結晶と、真空中で 1573K, 24h の還元熱処理を行い 2.65~3.05 nm の周期で面欠陥が導入された酸化チタン結晶 (TiO_{2-δ}; δ = 0.036 ~ 0.038) の熱伝導率を、時間分解サーモリフレクタンス法により測定した。

結果及び考察 Table 1 に室温における熱伝導率の測定結果を示す。[001]_{rutile}, [100]_{rutile} のいずれも TiO_{2-δ} の熱伝導率は単結晶 TiO₂ よりも低く、面欠陥の導入により熱伝導率が低下することが分かった。Fig. 1 に TiO_{2-δ} の室温から 573 K の熱伝導率を示す。比較のために多結晶 TiO₂ の熱伝導率も示した[4]。TiO_{2-δ} の熱伝導率は、[001]_{rutile}, [100]_{rutile} のいずれも温度の増加に伴いわずかに減少するが、熱伝導率の温度依存性は多結晶 TiO₂ と比較して小さかった。酸化チタンへの周期的な面欠陥の導入に伴う熱伝導率の変化を考えるために、2 つのモデルで

[100]_{rutile} の熱伝導率の計算を行った。いずれも Callaway モデルに基づき[5]、Model 1 では面欠陥の周期性を考慮せず、境界散乱が起こると仮定し、Model 2 では面欠陥の周期配列による zone-folding 効果による高周波フォノンの群速度の低下と、ウムクラップ散乱の増加を考慮に入れた。周期配列を考慮せず境界散乱を仮定した Model 1 よりも、面欠陥の周期配列を考慮に入れた Model 2 の方が熱伝導率の温度依存性は小さくなり、実験結果を再現している。このことから、面欠陥の周期配列に伴い高周波フォノンの群速度が低下し、熱伝導率が抑制されることが示唆された。

Table 1. Thermal conductivity at room temperature.

	Thermal conductivity (W/mK)	
	[001] _{rutile}	[100] _{rutile}
TiO ₂ single crystal	8.5	5.5
TiO _{2-δ}	5.1	3.4

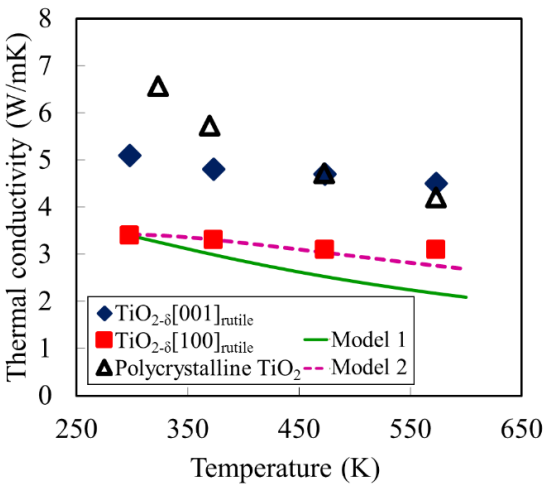


Fig. 1. Thermal conductivity of TiO_{2-δ} and calculation results based on Callaway model.

[1] J. Maire *et al.*, Sci. Adv., 3 (2017) e1700027.
[2] M. Maldovan, Phys. Rev. Lett., 110 (2013) 025902.
[3] S. Harada. *et al.*, The 65th JSAP spring meeting (2018) 20a-C304-5.
[4] S. Harada *et al.*, J. Appl. Phys., 108 (2010) 083703.
[5] J. Callaway, Phys. Rev., 113 (1956) 1046.