カルコパイライト $CuFeS_2$ のフォノン輸送解析と微細構造制御

Phonon transport analysis and microstructure control of Chalcopyrite $CuFeS_2$

物材機構 [1]、筑波大 [2]　○(P) 佐藤 直大 [1]、**Pei Se Gan**[1,2]、**S. N. Vijayaraghavan**[1]、掛札 洋平 [1]、川本 直幸 [1]、辻井 直人 [1]、森 孝雄 [1,2]

NIMS[1], Univ. Tsukuba[2], ○Naoki Sato[1], Pei Se Gan[1,2], S. N. Vijayaraghavan[1], Yohei Kakefuda[1], Naoyuki Kawamoto[1], Naohito Tsujii[1], Takao Mori[1,2]

E-mail: SATO.Naoki@nims.go.jp

反強磁性半導体として知られるカルコパイライト（黄銅鉱）$CuFeS_2$ は、元素置換によるキャリア濃度制御によって室温付近で 1 mW m^{-1} K^{-2} を超える出力因子 $S^2\sigma$（S: Seebeck 係数、σ: 電気伝導率）を示し、安価かつ環境調和性に優れた有望な n 型熱電材料である [1]。一方で、格子熱伝導率が高いために無次元性能指数 ZT は実用的な水準に達していない。本研究では、$CuFeS_2$ において適切な形態の微細構造を形成して有効に格子熱伝導率を低減するために、微視的な観点からフォノン輸送に関する知見を得ることを目的として、第一原理計算に基づいた解析を行った。

第一原理に基づいて計算した原子間力定数を入力として AlmaBTE [2] を用いて格子熱伝導率を計算した。Fig.1 に 300 K におけるバルク単結晶の格子熱伝導率で規格化した累積熱伝導率を平均自由行程の関数として示す。$CuFeS_2$ の格子熱伝導率においては平均自由行程が 100 nm–1 μm 程度の領域のフォノンが支配的であり、この領域の長さスケールの微細構造を導入することが格子熱伝導率の低減に有効であることが示唆された。発表では、更に詳細な計算結果の他に、$CuFeS_2$ の結晶粒径を制御したバルク試料および薄膜試料における実験結果も報告し、理論計算の結果と併せて議論する。

参考文献

[1] N. Tsujii and T. Mori, Appl. Phys. Express **6**, 043001 (2013), R. Ang *et al*., Angew. Chem. Int. Ed. **54**, 12909 (2015), H.Takaki *et al*., Mater. Today Phys. **3**, 85 (2017).

[2] J. Carrete *et al*., Comput. Phys. Commun. **220**, 351 (2017).

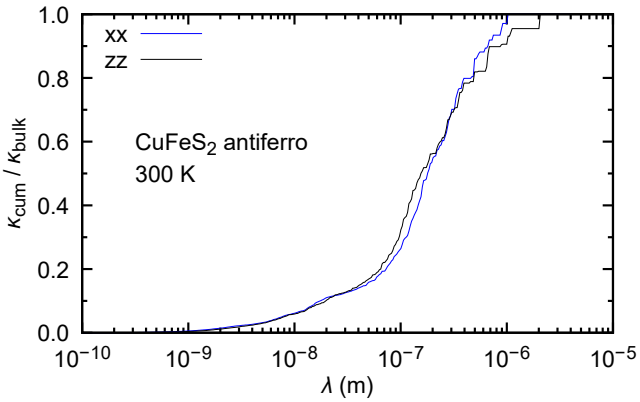

Fig.1. Normalized cumulative thermal conductivity of $CuFeS_2$ with respect to phonon mean free path.