

面欠陥周期配列を含む酸化チタン自然超格子の熱輸送における フォノンの粒子性と波動性の定量化

Quantifying phonon particle and wave in thermal transport of titanium oxides superlattices
with an ordered arrangement of planar faults

名大¹, 産総研², JST さきがけ³

○(M2)杉本 峻也¹, 田川 美穂¹, 宇治原 徹^{1,2}, 原田 俊太^{1,3}

Nagoya Univ.¹, AIST², JST PRESTO³

○Shunya Sugimoto¹, Miho Tagawa¹, Toru Ujihara^{1,2}, Shunta Harada^{1,3}

E-mail: sugimoto.s@unno.material.nagoya-u.ac.jp

はじめに フォノンの波動性に着目した周期構造による高度な熱輸送制御に向けた研究が行われている。室温では、THz オーダーのフォノンが熱伝導に寄与し、これらを制御するにはナノスケールの周期構造が必要であり、界面では原子スケールでの完全性が求められるが、非平衡な薄膜成長法ではそのような構造を得ることは極めて難しい。そこで我々は、ナノスケールの周期的な面欠陥配列を含むバルク結晶が熱力学的安定相として得られる酸化チタン自然超格子に着目しており、これまでにその界面の完全性が極めて高く^[1]、波動的なフォノンによる熱伝導が顕在化することが示唆されている^[2]。本研究では、フォノンの粒子性、波動性の両方を考慮に入れた熱伝導率の計算により、それぞれの寄与を定量化することを目的としている。

計算モデル Debye-Callaway モデル^[3]をもとに、熱伝導率の計算を行い、以下の式により波動的なフォノンと粒子的なフォノンの熱伝導率への寄与を別々に計算した。

$$K_{total} = \int_0^{\omega_c} K_w(\omega) d\omega + \int_{\omega_c}^{\omega_D} K_p(\omega) d\omega \quad (1)$$

ここで ω_c は、ブラッグの条件を満たし、波長が周期の2倍となるときの周波数である。波長が周期の2倍よりも長い場合 ($\omega < \omega_c$) には、クロニッヒ・ペニーモデルによりフォノンバンドを計算し、バンドギャップの形成と群速度の低下を考慮して波動的な寄与 (K_w) を計算した。波長が周期の2倍よりも短い場合 ($\omega > \omega_c$) には、zone folding の影響は考えず、群速度を一定として、粒子的な寄与 (K_p) を計算した。緩和時間の計算には、ウムクラップ散乱、不純物散乱、境界散乱に加えて、specularity parameter に依存する面欠陥における散乱を考慮した^[4]。

結果及び考察 面欠陥の周期が 1.3 nm である Cr 添加自然超格子多結晶の熱伝導率^[3]と、熱伝導率の計算結果を Fig. 1 (a)に示す。界面粗さが 20 pm の時、熱伝導率の計算値は測定結果をよく再現しており、この界面粗さは透過電子顕微鏡による評価結果とも一致している。波動的な寄与と粒子的な寄与の温度依存性は異なっており、低温では波動的な寄与が大きく、温度の増加とともに、粒子的な寄与が大きくなることがわかる。Fig. 1 (b)に各温度における粒子的な寄与と波動的な寄与の割合を示す。低温では波動的な寄与が大きく、50 K においては約 75%であるが、温度の増加とともに減少する。しかし、室温においても波動的な寄与は約 30%もあり、完全性の高い面欠陥周期配列を含む自然超格子酸化チタン結晶では、室温においても波動的なフォノンによる熱輸送が顕在化することが期待される。

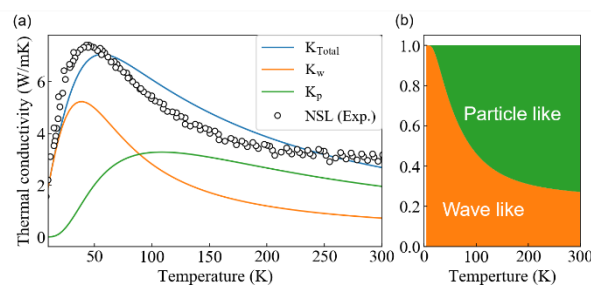


Fig. 1 (a) Measurement calculation results of thermal conductivity for and NSL. (b) Particle-like and wave-like contributions to heat conduction.

【参考文献】

- [1] S. Harada et al., J. Phys. Chem. C (2021) 125 15731.
- [2] S. Harada et al., Scr. Mater. (2022) 208 114326.
- [3] W. R. Thurber et al., Phys. Rev. (1965) 139 A1655.
- [4] Y. K. Koh et al., Adv. Funct. Mater. (2009) 19 610.
- [5] S. Sugimoto et al., JSAP spring meeting (2021) [16a-Z32-2].