

面欠陥周期配列を含む Cr 添加酸化チタン多結晶の熱伝導率の温度依存性

Temperature dependence of thermal conductivity of Cr-doped titanium oxides polycrystalline with an ordered arrangement of planar faults

名大¹, 豊田工大², JST CREST³, 産総研⁴, JST さきがけ⁵

○(M1)杉本 峻也¹, 金 柯怜², 竹内 恒博^{2,3}, 田川 美穂¹, 宇治原 徹^{1,4}, 原田 俊太^{1,5}

Nagoya Univ.¹, Toyota Technological Institute², JST CREST³, AIST⁴, JST PRESTO⁵

○Shunya Sugimoto¹, Gareoung Kim², Tsunehiro Takeuchi^{2,3}, Miho Tagawa¹,

Toru Ujihara^{1,4}, Shunta Harada^{1,5}

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

はじめに 周期構造によるコヒーレントフォノンの制御によって、高度な熱輸送制御に向けた研究が行われている^[1]。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。そこで我々は、熱力学的安定相としてナノスケールの周期的な面欠陥が得られる酸化チタン自然超格子に着目して研究を進めている。これまでに走査透過電子顕微鏡による原子配列直接観察の結果から、3 nm 周期の面欠陥の周期に対してその界面粗さが 0.018 nm であることを確認している^[2]。本研究では、完全性の高い周期界面を含む酸化チタン自然超格子多結晶の熱伝導率の測定を行った。

実験方法 TiO₂ 粉末と Cr₂O₃ 粉末を混合し、アーク溶解法により、焼結体を溶解し多結晶試料を作製し、酸化と均質化のために大気中で熱処理を行った。得られた結晶の構造評価を透過電子顕微鏡法(TEM)により行った。また、定常法により 10 K から室温までの熱伝導率の測定を行った。

結果及び考察 TEM 観察の結果、作製した Cr 添加自然超格子多結晶には、面欠陥が 1.3nm の間隔で周期配列をしていた。Fig. 1 に作製した二酸化チタン (TiO₂) 多結晶、Cr 添加自然超格子多結晶 (Cr-doped NSL) の熱伝導率の温度依存性を示す。Cr 添加自然超格子多結晶の熱伝導率は TiO₂ よりも低い値を示し、低温の方がその差は大きかった。周期界面が熱伝導特性に与える影響を考察するため、Debye-Callaway モデルを用いて熱伝導率の計算を行った。緩和時間の計算には、ウムクラップ散乱、不純物散乱、境界散乱を考慮に入れた^[3]。面欠陥を含まない TiO₂ の計算値 (TiO₂ calc) は、Thurber らによって報告されている緩和時間計算式を用い^[3]、境界散乱の長さを結晶粒径 (80 μm) として、不純物散乱の係数のみを TiO₂ 多結晶の測

定結果にフィッティングして求めた値を用いた。Model-1 は、面欠陥において境界散乱が起こると仮定し、境界散乱の長さを面欠陥の間隔 (1.3 nm) とし、その他の値は TiO₂ と同じとした場合で、測定値よりも大幅に低い値となった。Model-2 では、面欠陥の境界散乱において界面粗さを考慮し、面欠陥における散乱の緩和時間 (τ_f) の計算には下記の式を用いた^[4]。

$$\tau_f^{-1} = \frac{v}{L_f} \{1 - \exp(-16\pi^3 (\frac{R}{\lambda})^2)\} \quad (1)$$

ここで、 v は音速、 L_f は面欠陥の間隔、 R は界面粗さ、 λ はフォノンの波長である。 $R = 0.1$ nm の場合、Model-1 に近い値となるが、 $R = 0.01$ nm とすると、Cr 添加自然超格子の実験値と同様の温度依存性を示した。熱伝導率の測定結果を再現する界面粗さの値は、TEM 観察の結果とよく一致している。これらの結果から、本研究において作製した酸化チタン自然超格子多結晶中に周期配列した面欠陥は、熱輸送に寄与するフォノンに対してコヒーレントな界面であると考えられる。

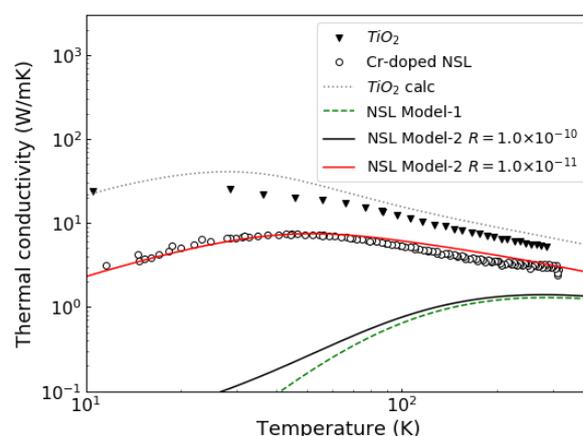


Fig. 1 Measurement calculation results of thermal conductivity for TiO₂ and NSL.

[1] M. Maldovan, Nature, 503 (2013) 209.

[2] S. Harada *et al.*, JSAP spring meeting (2018).

[3] W. R. Thurber, *et al.*, Phys. Rev., 139, A1655, (1965).

[4] Y. K. Koh *et al.*, Adv. Funct. Mater. 19 (2009) 610.