

Ag₂S_xSe_{1-x}における電子・格子熱伝導度の解析

Analyses of composition-dependent electron and lattice thermal conductivity for silver chalcogenides Ag₂S_xSe_{1-x}

豊田工大, °平田圭佑, Saurabh Singh, 松波雅治, 竹内恒博

Toyota Tech. Inst., °Keisuke Hirata, S. Singh, M. Matsunami, and T. Takeuchi

E-mail: sd20502@toyota-ti.ac.jp

緒言

素子を通過する熱流を制御する熱ダイオード/レギュレータ/スイッチは、熱を有効活用する「熱マネジメント」の基盤技術として、近年、注目されている^[1]。温度・電場・磁場など、外場により熱伝導度が大きく変化する機能性材料は、その構成部材となる。

上記の要請から、我々は、銀および銅カルコゲン化合物(Ag, Cu)₂Ch (Ch = S, Se, Te)に着目し、固体物性を利用した熱流制御デバイスの開発を行ってきた^[2, 3]。熱流制御デバイス開発において、さらなる高性能化に向けた指針を構築するためには、材料の熱伝導度を支配する因子、および、その寄与の程度を明らかにすることが不可欠である。しかしながら、(Ag, Cu)₂Chは、スプリットサイト、イオン伝導性^[4]、および、強い電子相関・スピン軌道相互作用による複雑な電子構造^[5]という特徴を有しており、このような条件下において、熱伝導度に対する電子と格子振動の寄与を正確に決定する手法は確立されていない。

本研究では、様々な組成の Ag₂S_xSe_{1-x} について、電子・格子振動成分の熱伝導度への寄与、および、その外場依存性を明らかにすることを目的とし、単相試料作製法を確立するとともに、詳細な物性測定を行った。

実験方法

自己発熱反応法および熔融法で試料を合成し、ホットプレス法により高密度に成形した。試料は、粉末 X 線回折測定により単相であることを確認し、Rietveld 法による構造解析も行った。熱伝導度は Laser flash 法により測定した。また、電気伝導度測定 (4 端子法)、ゼーベック係数測定 (非定常法)、および、音速測定 (超音波法) から、熱伝導度に対する電子・格子振

動成分の寄与を様々な手法で解析し、解析した値の妥当性を検討した。

結果・考察

Ag₂S_xSe_{1-x} について、室温において得られた熱伝導度の組成依存性を Fig. 1 に示す。Ag₂S 型の結晶構造を有する材料 (0.4 ≤ x ≤ 1.0) では、0.7 Wm⁻¹K⁻¹ 以下の極めて低い熱伝導度が観測され、x = 0.7–0.8 において熱伝導度が最小 (~0.4 Wm⁻¹K⁻¹) になることが分かった。物性測定の結果から、x = 1.0 から 0.7 にかけて熱伝導度が低下する現象は、Se 置換により格子熱伝導度が下がったことに起因しており、x = 0.7 から 0.4 にかけて熱伝導度が上昇する現象は、一定以上のキャリアが導入され、電子熱伝導度の寄与が現れたことに起因すると考えている。

電気伝導度、ゼーベック係数、音速測定の結果、および、電子・格子熱伝導度の寄与についての詳細な考察は、当日の講演にて報告する。

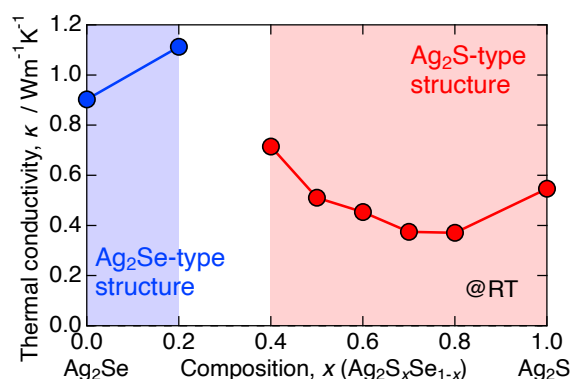


Fig. 1. Thermal conductivity of Ag₂S_xSe_{1-x} measured at room temperature.

参考文献

- [1] G. Wehmeyer *et al.*, *Appl. Phys. Rev.* **4**, 041304 (2017).
- [2] K. Hirata *et al.*, *J. Electron. Mater.* **49**, 2895 (2020).
- [3] T. Matsunaga *et al.*, *Mater. Trans.* **62**, 16 (2021).
- [4] H. Okazaki, 日本金属学会会報 **16**, 689 (1977).
- [5] W. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 156808 (2011).