

金属-絶縁体転移物質 CuIr_2S_4 の Zn 置換による異常な熱伝導率低下の抑制

Suppression of anomalous thermal conductivity reduction in CuIr_2S_4 by Zn substitution

東工大材料 ○(M2) 橋本 賢太, 気谷 卓, 川路 均

Tokyo Tech., OKenta Hashimoto, Suguru Kitani, and Hitoshi Kawaji

E-mail: hashimoto.k.ba@m.titech.ac.jp

物質内の熱キャリアにはフォノンや電子などがあり、通常の物質の熱伝導率はフォノンの寄与(フォノン熱伝導率)と電子の寄与(電子熱伝導率)の和によって決まる。絶縁体の場合はフォノン熱伝導率のみによって総熱伝導率が決まる一方で、金属の場合はフォノンと電子が熱キャリアとなるため、一般に金属の熱伝導率は絶縁体よりも高くなる。そのため、金属-絶縁体転移(MIT)を示す物質では絶縁相よりも金属相で熱伝導率が高くなることが予想される。しかし、230K で MIT を示す CuIr_2S_4 の熱伝導率は金属相がむしろ低くなっており、[1-3]熱伝導率に異常な振る舞いが起きていることがわかる。そこで本研究では Zn 置換により MIT を抑制した際の熱伝導率挙動を観察し、MIT に伴う異常な熱伝導率変化の原因について熱輸送の観点から調べた。

多結晶 $\text{Cu}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Ir}_2\text{S}_4$ ($0 \leq x \leq 0.3$) は固相反応法を用いて作製し、X 線回折測定によって試料の同定を行った。さらに自家製測定系を用いて、4 端子法による電気抵抗測定、定常法による熱伝導率測定を、また Quantum Design 社 PPMS を用いた緩和法による熱容量測定を行った。

Zn 置換を行っていない試料($x = 0$)での熱伝導率測定の結果は先行研究[1-3]と定性的に一致していることを確認した(Fig. 1)。図中黒点線で示した電子熱伝導率 κ_e は電気伝導率 σ の測定結果からウィーデマン・フランツ則($\kappa_e = \sigma LT$, L :ローレンツ数, T :絶対温度)により見積もったもので、黒線で示したフォノン熱伝導率 κ_{ph} は総熱伝導率 κ_{tot} から κ_e を差し引いたものである。これに $x = 0$ における金属相での低い κ_{tot} は、MIT に伴う κ_{ph} の急激な減少に起因していることがわかる。Fig. 2 は Zn をドーブした際の熱伝導率を表しており、 $x = 0.05, 0.1$ の κ_{tot} は $x = 0$ とは異なり金属相で高い κ_{tot} を示しており、また MIT が完全に抑制される $x = 0.3$ では異常な振る舞いは見られなかった。ここで κ_{ph} に注目すると、 $x = 0.05$ では $x = 0$ と同様に金属相で低い κ_{ph} を示しているが、MIT に伴う減少値(0.13 W/m·K)は $x = 0$ での値(1.1 W/m·K)よりも小さくなっており、 $x = 0.1$ では逆に金属相で高い κ_{ph} をもつことがわかった。さらに 300 K における $x = 0.05, 0.1, 0.3$ の κ_{ph} は x の増加とともに大きくなることがわかった。このような振る舞いは、Zn 置換してない試料では金属相の κ_{ph} が通常の値よりも大幅に低減しており、Zn の置換によってこの低減が抑制されること示唆している。発表ではさらに金属相での κ_{ph} 低減の原因についてフォノン気体モデルに基づいた熱伝導率解析から考察を行う。

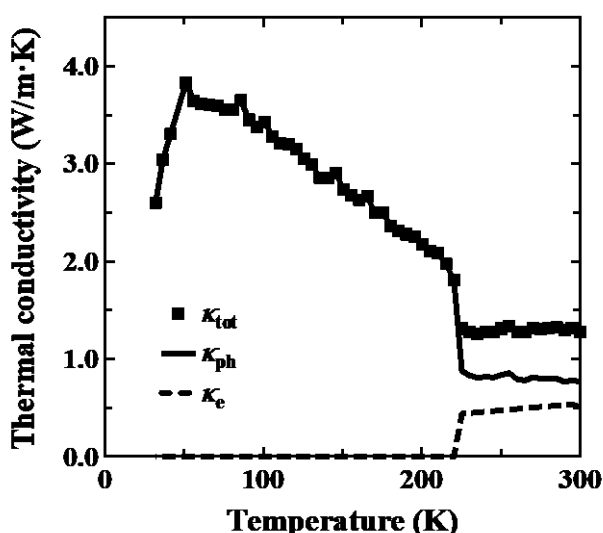


Fig. 1 Thermal conductivity of CuIr_2S_4

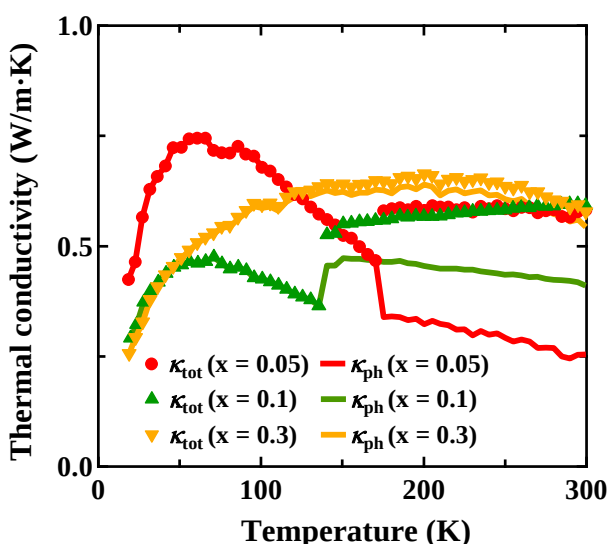


Fig. 2 Thermal conductivity of $\text{Cu}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Ir}_2\text{S}_4$ ($x = 0.05, 0.1, 0.3$)

【参考文献】

- [1] H. Kang, *et al.*, J. Appl. Phys. **83**, 6977 (1998).
- [2] K. Balcerek, *et al.*, Philos. Mag. B. **79**, 1021 (1999).
- [3] M. Ito, *et al.*, Solid State Commun. **265**, 23 (2017).