面外ひずみがグラファイト層間化合物の熱伝導に及ぼす影響

Effects of cross-plane strain on heat conduction in graphite intercalation compounds

○正 志賀 拓磨 (東京大, さきがけ) 小宅 教文 (東京大) 渡邊 玲奈 (東京大)
南谷 英美 (分子研, さきがけ) 岡田 晋 (筑波大)

Takuma Shiga^{1,*}, Takafumi Oyake¹, Reina Watanabe¹, Emi Minamitani^{2,*}, and Susumu Okada³

¹ The University of Tokyo, 7-3-1, Hongo, Bunkyo, Tokyo, 113-8656, Japan

² Institute for Molecular Science, 38 Nishigo-Naka, Myodaiji, Okazaki, 444-8585, Japan

³ University of Tsukuba, Tsukuba, Ibaraki, 305-8571, Japan

* Japan Science and Technology Agency, PRESTO, 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama, 332-0012, Japan

Key Words: Graphite intercalation compounds, heat conduction, first principles, thermoelectrics

1. 緒言

グラファイト層間化合物(Graphite Intercalation Compounds, GIC)はホストであるグラファイトと、層間に周期的に挿入された原子や分子(ゲスト)間の電子のやり取りによって、ゲストの種類に依存したユニークな電子的特性を示すことが知られている⁽¹⁾。面外方向にひずみを印加することで、ホスト・ゲスト間の電気的な相互作用が変化するため、原子間の線形・非線形バネ定数も変化することが期待される。本研究では、第一原理に基づいてアルカリ金属をゲストとする二種類のGIC(KC₈とLiC₆)の面内・面外熱伝導率(κ_{in} , κ_{out})の面外ひずみ依存性を調べた。

2. 方法論

KC₈とLiC₆の格子定数と内部座標を最適化したのちに、phonopyとShengBTEを用いてフォノン分散関係と熱伝導率を計算した。エネルギー及び電荷密度に対するカットオフエネルギーはKC₈, LiC₆ともに80, 800 Ryに設定した。LDA交換相関汎関数を用いたウルトラソフト型の擬ポテンシャルを採用し、第一原理計算にはQuantum Espressoを用いた。

3. 結果と考察

c軸(面外)方向に圧縮ひずみを0%, 5%, 10%印加したKC₈のフォノン分散関係をFig. 1(a-c)に示す。ひずみを印加すると面外方向(Γ -Z)の低周波音響モードの周波数が増加することに加え、フラットバンドの解消やハードニングなど面内のフォノン分散が変調されていることが分かった。熱伝導に関しては、印加したひずみが大きくなるに従い、KC₈の室温における κ_{out} は3倍増加する一方で κ_{in} は30%減少した。 κ_{in} の周波数スペクトル(Fig.1(d))を計算することで熱伝導が抑制された周波数領域を調べた結果、面内分散の変調が顕著であった10-20 THzの周波数帯であることを同定した。同様の計算をLiC₆に対して行った結果、 κ_{out} はKC₈と同様に4倍増加している一方で、 κ_{in} は50%増加しており、ゲストの種類によって面内の熱伝導性が異なることが明らかになった。

参考文献

(1) M. S. Dresselhaus and G. Dresselhaus, *Advances in Physics* **30**, 139 (2006).

Fig. 1 Phonon dispersion relations of KC₈ for different magnitudes of the strain in the cross-plane direction: (a) 0%, (b) 5%, and (c) 10%. (d) Spectral thermal conductivities of KC₈ for several strains at $T=300$ K.