

分子動力学法を用いた $\text{YbCo}_4\text{Sb}_{12}$ の熱振動解析○橋本怜奈¹、澤口直哉¹、佐々木真¹、関根ちひろ¹¹室蘭工業大学大学院 工学研究科 (〒050-8585 北海道室蘭市水元町 27-1)

【緒言】 充填スクッテルダイト化合物 $\text{YbCo}_4\text{Sb}_{12}$ は、結晶構造に Sb-Sb 結合で構成されるカゴ状格子をもち、そのカゴ状格子内に充填された Yb 原子が、格子振動から独立した非調和な原子運動（ラットリング振動）をすると考えられている。ラットリング振動により長波長のフォノンが強く散乱され、熱伝導率への格子熱伝導の寄与が低減されると考えられている¹⁾。この特性により、 $\text{YbCo}_4\text{Sb}_{12}$ は高電気伝導性と低熱伝導を同時に実現する材料であるため、熱電変換材料の候補として注目されている。しかし、ラットリング振動する原子の動的性質およびフォノン散乱との関連性についてはまだ確証がない。本報告では、分子動力学(MD)法を用いて $\text{YbCo}_4\text{Sb}_{12}$ の Yb 充填率ごとに振動解析および格子熱伝導率解析を行った結果を報告する。

【計算方法】 $\text{Yb}_x\text{Co}_4\text{Sb}_{12}$ ($x = 0\sim 1$) を計算対象とした。MD 計算は、ソフトウェア MXDORTO²⁾ を使用した。共有結合力項と近接反発力項からなる原子間相互作用を用い、三次元周期境界条件下で、 NPT アンサンブルを適用して行った。 Yb 充填率に応じて、粒子数(N)は 6912 から 7344 とし、圧力(P)は 0.1 MPa、温度(T)は 300~900 K の範囲に設定した。 $\text{Yb}_x\text{Co}_4\text{Sb}_{12}$ の Yb 充填率ごとの格子定数³⁾にフィッティングし、各原子間相互作用を試行錯誤的に決定した。格子熱伝導率は Green-Kubo 公式に則って MD 計算の結果から算出した。

【結果と考察】 Fig.1 に、 Yb 充填率ごとの $\text{YbCo}_4\text{Sb}_{12}$ の格子熱伝導率の計算結果を示す。 Yb 充填率の増加に伴い、格子熱伝導率は低下する傾向が得られた。 $x = 0.2\sim 0.8$ については、図中の補助線よりも値が小さいことから、格子熱伝導率が Yb 充填率に対して直線的に減少していないことがわかる。この傾向は、実験とも一致する⁴⁾。なお、実験では Yb 充填率 $x = 0.3$ 程度までしか合成報告がないため³⁾、それ以降の充填率での格子熱伝導率の傾向はわかっていない。今回の MD 計算による結果からは、 $\text{YbCo}_4\text{Sb}_{12}$ の格子熱伝導率は Yb 充填率 x の増加に伴い、単調に減少する可能性が示唆された。

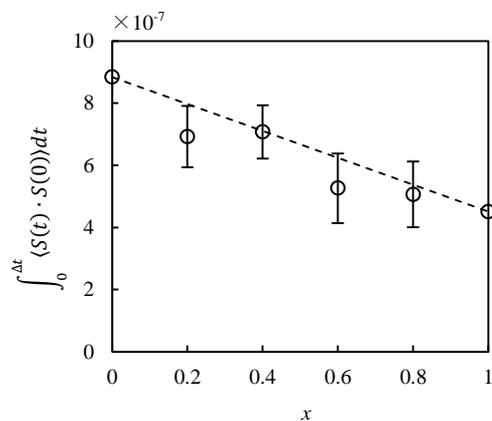


Fig.1 Lattice thermal conductivity of $\text{Yb}_x\text{Co}_4\text{Sb}_{12}$ at 300 K

【参考文献】

- 1) G.A.Slack, CRC Handbook of Thermoelectrics, D. M. Rowe (ed.), CRC Press(1995).
- 2) K.Kawamura, MXDORTO, JAPAN Chemistry Program Exchange, #29.
- 3) Y.Chen, Y.Kawamura, C.Sekine, Japanese Journal of Applied Physics 54, 055501 (2015).
- 4) X.Y.Zhao et al., Appl.Phys.Lett.89, 092121 (2006)