

Title	分子動力学法によるPb _{1-x} Ge _x Teの格子熱伝導シミュレーション
Author(s)	泉, 陽介
Citation	
Issue Date	2003-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/3026
Rights	
Description	Supervisor:片山 信一, 材料科学研究科, 修士

分子動力学法による $Pb_{1-x}Ge_xTe$ の格子熱伝導シミュレーション

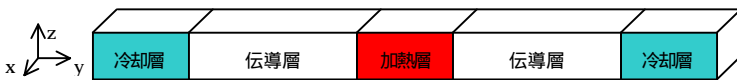
泉 陽介 (片山研究室)

【はじめに】中間温度領域(300-900K)での熱電材料 PbTe およびその固溶体は、新規傾斜機能材料として広く注目されている。ゼーベック係数 S 、電気伝導度 σ 、熱伝導度 κ を用いて熱電性能指数は $Z = S^2\sigma/\kappa$ であらわされる。 κ は電子部分 κ_e と格子熱伝導度 κ_l の2成分からなり、 κ_l の減少はより大きな Z を導く。非調和格子振動解析の立場から κ_l に関する理論的研究は古くからあるが、原子の運動から直接把握する研究はほとんどなされてこなかった。本研究の目的は分子動力学 (Molecular Dynamics : MD) 法により、 $Pb_{1-x}Ge_xTe$ 混晶系の格子熱伝導シミュレーションをおこなって、その挙動を明らかにすることにある。中間温度領域は十分デバイ温度より高いため、この古典的扱いが有効と考えられる。扱う系は単結晶を想定し、熱伝導度の異方性と Ge 含有量への依存性を調べる。この結果に基づいて、 κ_l の減少に導く方位と濃度を見つけ、性能指数向上の一要素として役立てたい。

【分子動力学法】本研究で扱う系を下の模式図に示す、熱は y 方向に流れるものとする。NaCl 構造を仮定しての xz 断面は [010] 方位では 25 個の原子を含む、以降これを原子面と呼ぶ。冷却層、加熱層は 3 つの原子面、伝導層は 8 つの原子面からなり、全系の原子数は 625 個となる。冷却層と加熱層の温度がそれぞれ 200K と 800K となるように 10 シミュレーションステップ(step)毎に温度制御を行った。定常熱流の達成は、冷却層に流れ込む熱流束の時間変化を追跡して判断する。定常状態における平均熱流束と温度勾配を算出し、熱伝導度を計算する。これまで [010] 方位への伝導に関する説明を行ってきたが、同様な手続きを他の [110]、[111] 方位に関しても実施し、熱伝導の異方性を導く。また $Pb_{1-x}Ge_xTe$ については [010] 方位の熱伝導を取り上げ、濃度別に熱伝導度を計算する。本研究では、定常状態条件を十分に満たすステップ数として、20000step(1step:2fs)を選択する。

【結果と考察】図 1 には 3 方位への熱伝導に関連して、各面内にある原子の平均運動エネルギーより算出した温度を伝導層の各原子面番号に対してプロットした。層境界にある原子面を除き、ほぼ一定の勾配を持つことがわかる。この領域での平均熱流束を算出し、フーリエ則を用いて熱伝導度を導き、それらを GeTe の結果とあわせて表 1 にまとめる。熱伝導度に大きな異方性が確認できる。

$Pb_{1-x}Ge_xTe$ の濃度別にシミュレーションした結果を図 2 に示す。 $x = 0.4 \sim 0.6$ 間に κ_l の極小を期待できる。Ge 含有量の小さい側では、 Pb^{2+} がイオンサイズの小さな Ge^{2+} により置換された結果、しっかりと組まれた NaCl 結晶内で Ge がからからと揺れるゆりかごの状態になり、熱をうまく伝導しない。一方高濃度域 ($x=0.6 \sim 1.0$) に入ると、GeTe 域を介して熱伝導が頻繁となり、GeTe の値に接近することがわかる。



方位	[010]	[110]	[111]
PbTe	2.237	2.708	3.086
GeTe	2.259	2.749	3.141

表 1 格子熱伝導度 $W/(mK)$

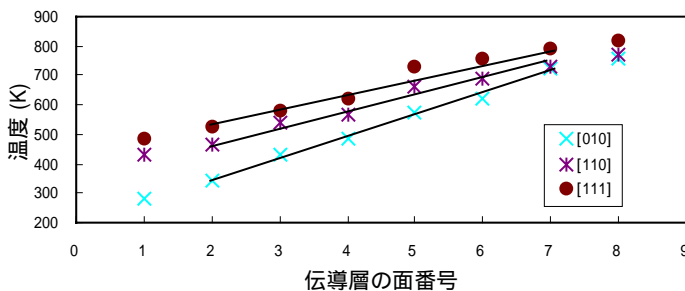


図 1 PbTe 伝導層 (左側) 温度分布

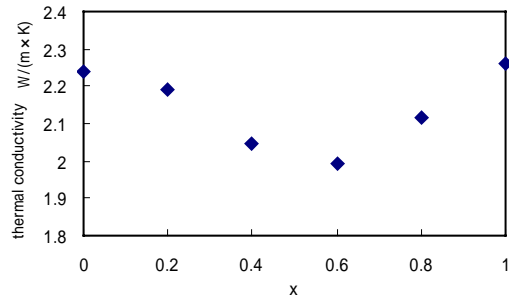


図 2 濃度別格子熱伝導度

【Keyword】熱電材料、MD、格子熱伝導度、PbTe、GeTe、 $Pb_{1-x}Ge_xTe$