

六角Ni_{1-x}Fe_xS的热导率跳变及其热整流效应研究

张雪凯^{1,2}, 童鹏², 林建超², 陈洁¹

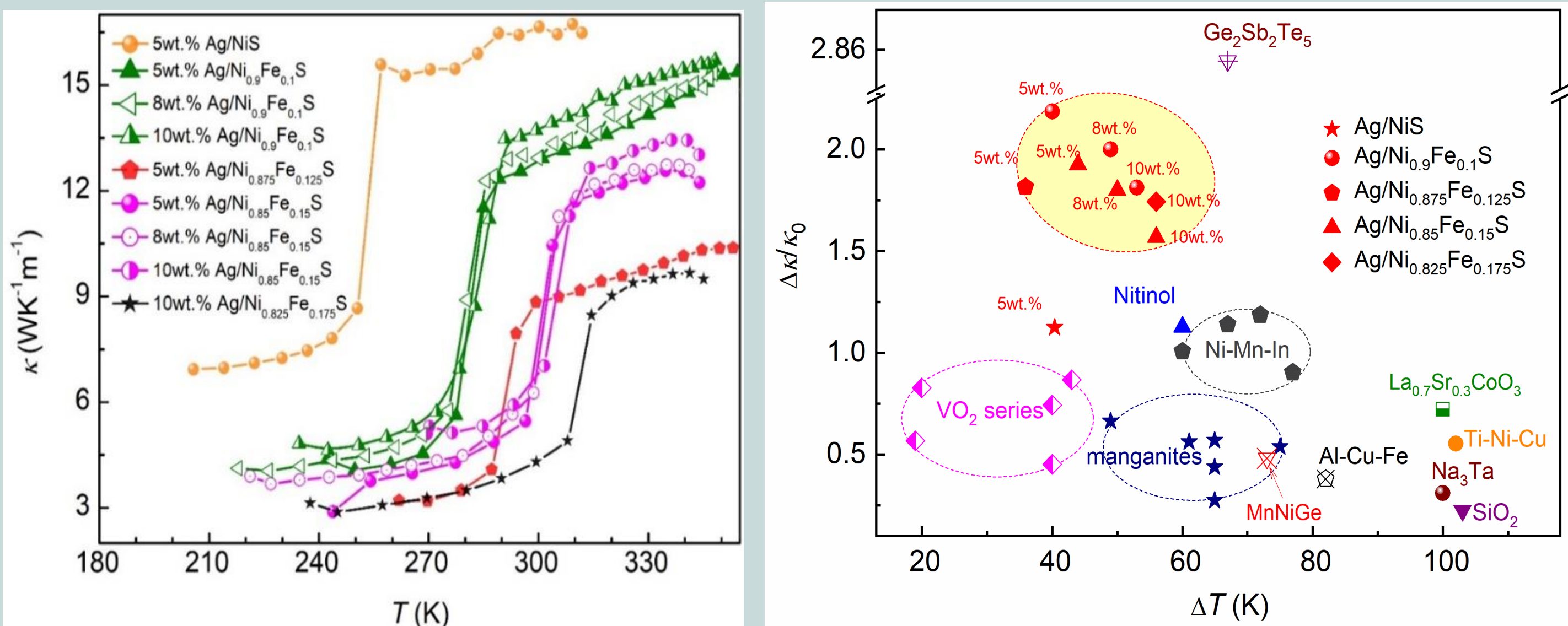
¹中国散裂中子源, 东莞, 523803

²固体物理研究所, 合肥, 230031

摘要

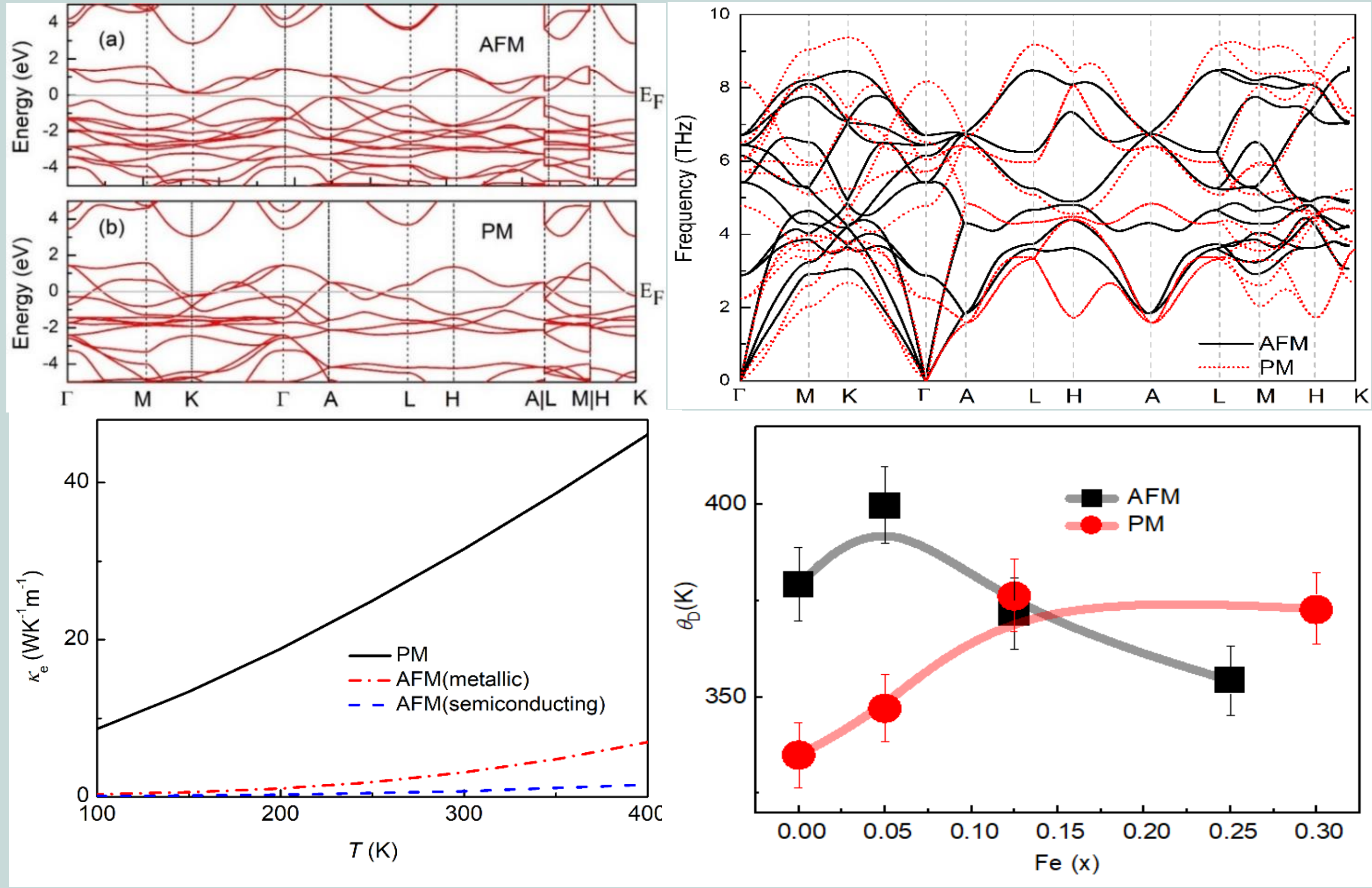
热能是最常见的能源利用的方式之一。因而, 控制热量的按需、有序传输, 对于提高能源利用率具有重要意义。铁掺杂六角硫化镍(Ni_{1-x}Fe_xS)是典型一级相变材料, 随着温度增加, 材料从反铁磁非金属相转变为高温金属相, 并且伴随着晶格、电子和自旋等多自由度的陡变。这种多自由度的耦合, 使其具有丰富的功能属性。本研究工作以 Ni_{1-x}Fe_xS ($x \leq 0.2$)为研究对象, 发现了一级相变处热导率可逆跳变效应, 结合理论计算阐明了其物理图像; 利用该效应构建了具有优异热整流效应的热二极管。

Ni_{1-x}Fe_xS热导率跳变效应及其物理机制



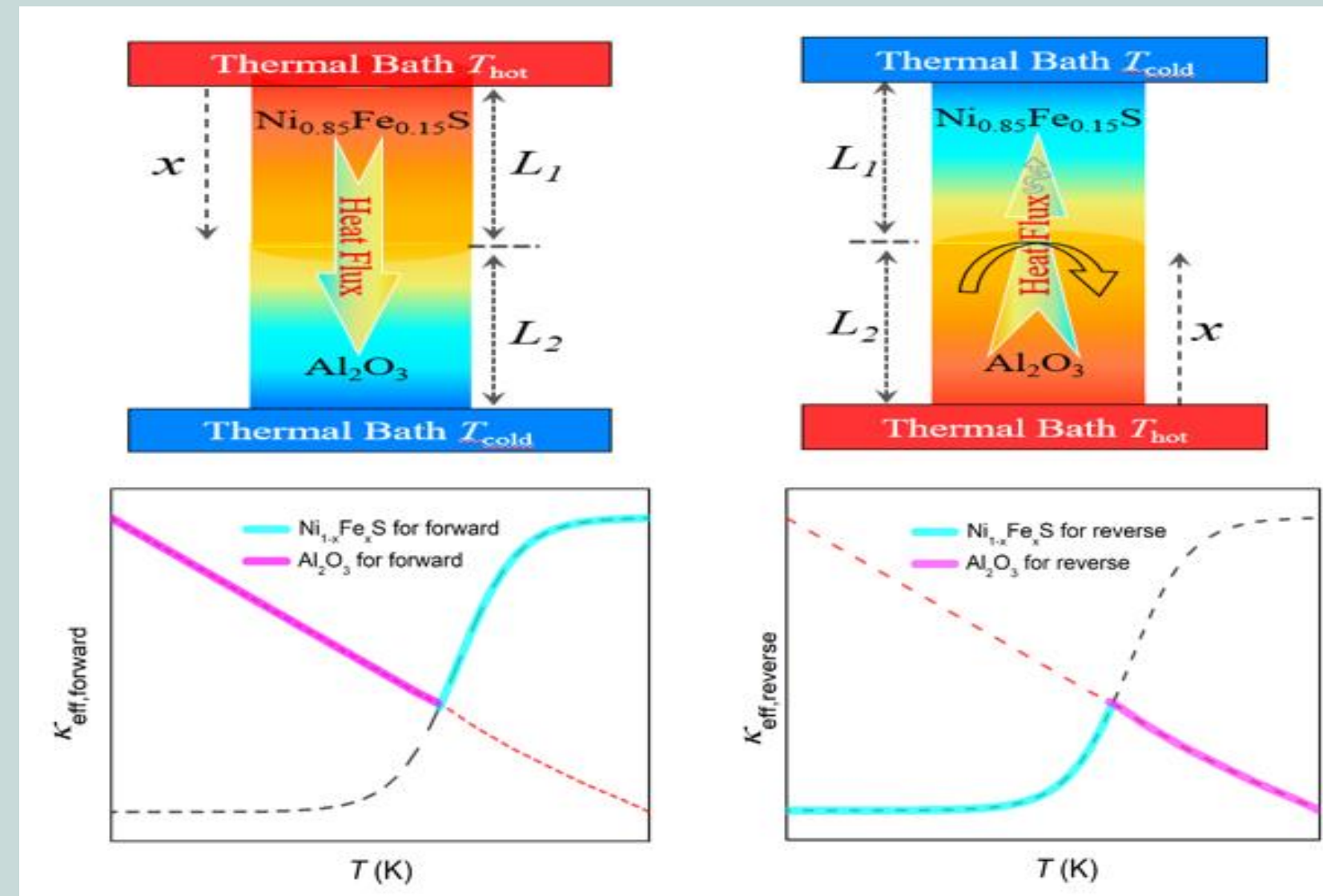
- Ag粘接Ni_{1-x}Fe_xS克服了其自身脆性, 具有良好的循环性能
- Ni_{1-x}Fe_xS一阶相变温度附近具有热导率可逆跳变效应, 即高温高热导率, 低温低热导率, 最大变化率 ($\Delta\kappa/\kappa_0$) 超过200%。
- 热导率跳变性能超过已知固态材料。

Ni_{1-x}Fe_xS热导率跳变效应物理机制

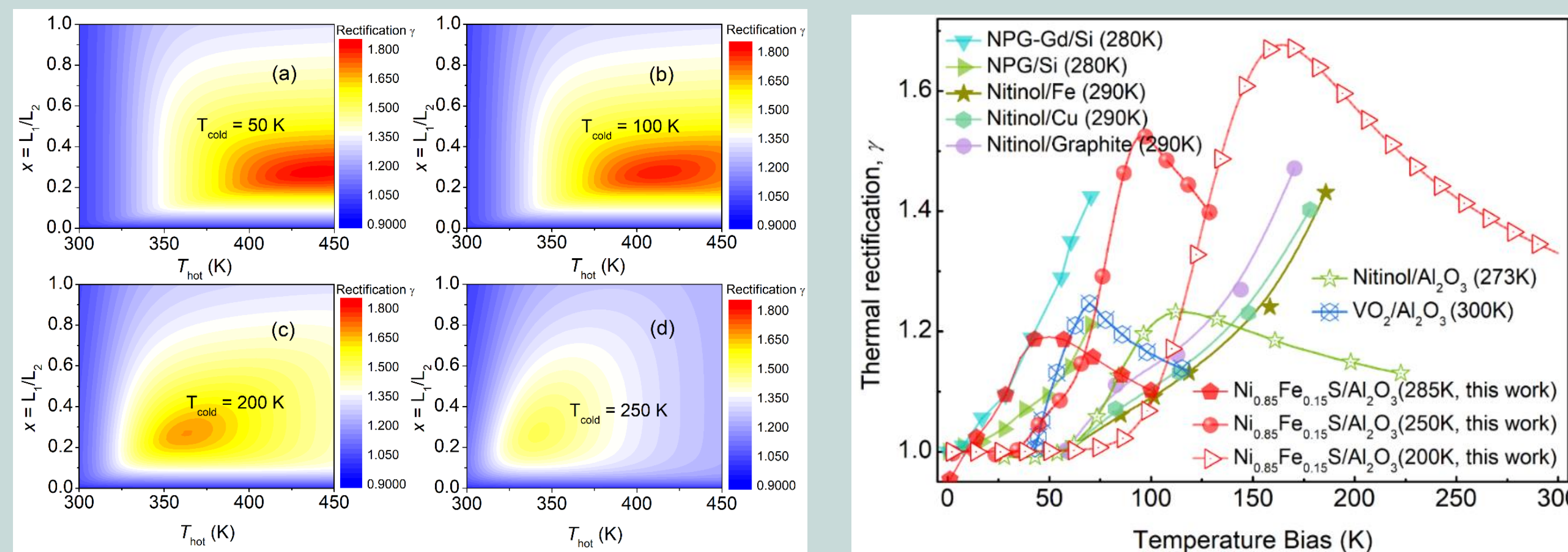


- 理论计算表明, 低温反铁磁相(半导体、金属)电子热导率(κ_e)远低于高温顺磁相;
- 结合NiS声子谱及Fe掺杂样品的德拜温度可知一级相变前后声子热导率(κ_l)较小;
- 电子能带结构突变是其热导率跳变的物理起源!

热整流效应: 类似于电流在二极管中的传输, 热流在热二极管的传导能力与热流的传导方向有关。尤其是由两种热导率变化趋势相反的具有热导率跳变特征的材料构成的异质结构, 表现出显著的热整流效应。热整流系数: $\gamma = Q_{\text{for}}/Q_{\text{rev}}$ (Q_{for} 和 Q_{rev} 分别表示当冷端温度和热端温度相同时, 正反向热流密度的大小)。



热二极管Ni_{0.85}Fe_{0.15}S/Al₂O₃的热整流效应



- 计算模拟表明, 无论是Ni_{0.85}Fe_{0.15}S和Al₂O₃长度比还是冷端温度(T_{cold}) 均显著影响该热二极管的热整流系数;
- 两者最优的长度比为0.28; 且 T_{cold} 降低可提高热整流系数;
- 实验表明, 当 T_{cold} 为250 K时, 热整流系数为1.51, 温度偏置为97K, 与计算模拟一致;
- 与同类型固态热二极管相比, 有明显的优势。

总结

在该工作中, 主要研究了Ag粘接对Ni_{1-x}Fe_xS热循环稳定性能的影响, 发现了其具有热导率可逆跳变效应, 最大变化率超过200%, 并澄清了电子能带结构突变是其热导率跳变的物理起源; 利用其热导率跳变效应构筑了热整流性能优异的热二极管Ni_{0.85}Fe_{0.15}S/Al₂O₃, 最大热整流系数为1.51, 并结合计算模拟阐明了影响该热二极管热整流性能的主要因素 (长度比、冷端温度、相变陡峭程度等)。

参考文献:

- [1] Zhang X K, Li J Y, Lin J C, Tong P, Wang M, Wang X L, Tong H Y, Zhang Y S, Song W H, and Sun Y P. Acta Materialia, 2021, 208: 116709.
[2] Zhang X K, Tong P, Lin J C, Tao K, Wang X L, Xie L L, Song W H, and Sun Y P, Physical Review Applied, 2021, 16(1): 014031