

d^0 電子系ペロブスカイト酸化物の熱電輸送特性計算における 交換相関汎関数/ポテンシャル依存

Influence of the exchange-correlation functional and potential on thermoelectric
transport calculations in d^0 perovskite oxides

物材機構¹, JST-さがけ², °大久保 勇男^{1, 2}, 森 孝雄¹

National Institute for Materials Science (NIMS)¹, JST-PRESTO², °Isao Ohkubo^{1, 2}, Takao Mori¹

E-mail: OHKUBO.Isao@nims.go.jp

【はじめに】密度汎関数理論 (DFT) と Boltzmann 理論を組み合わせた熱電輸送係数計算は、現在、熱電変換物質の研究において広く利用されている[1]。DFT 計算により得られた電子状態を使い、Boltzmann 理論を用いて輸送係数を計算するため、電子状態の計算結果が輸送係数計算に大きな影響を与える。DFT 計算において、計算結果に大きな影響を与える要因の一つが、交換相関汎関数/ポテンシャルの選択である。本研究では、熱電変換物質の研究で広く利用されている GGA-PBE 汎関数と mBJ 交換ポテンシャルの熱電輸送係数計算における影響を、既知物質である d^0 電子系ペロブスカイト酸化物(SrTiO_3 と KTaO_3)の計算結果を用いて比較を行った。

【計算方法】電子状態計算には WIEN2k コードを使用し、GGA-PBE 汎関数と、mBJ 交換ポテンシャルを用いて計算した。この mBJ 交換ポテンシャルは、GGA や LDA で問題となっているバンドギャップ(E_g)値の過小評価を改善する目的で開発された交換ポテンシャルである[2]。この2つの交換相関汎関数/ポテンシャルを用いて計算した電子状態を使い、Boltzmann 理論を用いた電子輸送係数計算コードである BoltzTraP を用いて、緩和時間近似と Rigid band 近似の条件下で、電気伝導度、Seebeck 係数、電子の熱伝導率を計算した。

【結果と考察】mBJ 交換ポテンシャルを用いて計算した SrTiO_3 と KTaO_3 の E_g 値は、GGA-PBE の計算結果に比べて改善されていた。mBJ を用いて計算した III-V 族化合物半導体やワイドギャップ酸化物半導体の電子状態において、

伝導帯下端の有効質量(m^*)の過大評価が指摘されている[3]。本研究で行った d^0 電子系ペロブスカイト酸化物では、伝導帯下端の m^* の顕著な過大評価は認められなかった。 SrTiO_3 と KTaO_3 の伝導帯下端の状態密度は、GGA-PBE に比べ mBJ の計算結果の方が大きく、それに伴う、電気伝導度と電力因子の増加と、Seebeck 係数の減少が確認された(図)[4]。当日は、GGA-PBE と mBJ の熱電輸送係数計算における差異を詳細に比較し議論する。

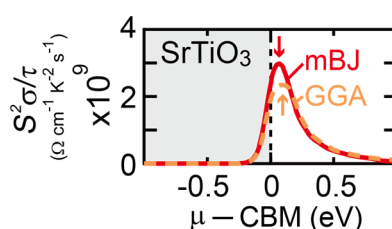


図: SrTiO_3 の伝導帯下端付近の電力因子(300 K)。灰色の領域は E_g の内部。

References

- [1] 例えば, K. Koumoto and T. Mori, Eds.; *Thermoelectric Nanomaterials*; Springer: New York, 2013.
- [2] F. Tran and P. Blaha, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 226401 (2009).
- [3] H. Dixit *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter* **24**, 205503 (2012); Y. S. Kim *et al.*, *Phys. Rev. B* **82**, 205212 (2010); R. B. Araujo *et al.*, *J. Appl. Phys.* **114**, 183702 (2013).
- [4] I. Ohkubo and T. Mori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 074705 (2017).

【謝辞】本研究は、JST-PRESTO、JST イノベーションハブ構築支援事業「情報統合型物質・材料開発イニシアティブ (MI²I)」、日本板硝子材料工学助成会からの支援のもと行われました。