

$\text{Cu}_3\text{Pn}(\text{S},\text{Se})_4$ ($\text{Pn}=\text{P},\text{As},\text{Sb}$)の第一原理計算による熱電効果の解析

First principles study on the thermoelectric properties of $\text{Cu}_3\text{Pn}(\text{S},\text{Se})_4$

($\text{Pn}=\text{P},\text{As},\text{Sb}$)

阪大理, ^{○(PC)}白井 秀知, 黒木 和彦

Osaka Univ., ^{○(PC)}Hidetomo Usui, Kazuhiko Kuroki

E-mail: h_usui@presto.phys.sci.osaka-u.ac.jp



エネルギー問題に対する関心が高まるなか、温度勾配による発電である熱電効果の研究は基礎・応用の両面からその重要度を増している。ゼーベック係数 S 、電気伝導度 σ 、熱伝導度 κ 、温度 T として、熱電性能の評価には、取り出せる電力の指針である電力因子 $PF = \sigma S^2$ と、総合評価である無次元性能指数 $ZT = \sigma S^2 T / \kappa$ が用いられ、 $ZT > 1$ が実用化の目安とされる。

ファマチナイト構造を持つ Cu_3SbSe_4 は、 ZT が大きな物質の一つである。 $\text{Cu}_3\text{Sb}_{1-y}\text{Ge}_y\text{Se}_{4-x}\text{S}_x$ では 700K 近傍で電力因子が約 1mW/mK^2 、熱伝導度が約 1W/mK となり、 $ZT \sim 0.9$ を達成する p 型熱電物質となる[1]。同様のファマチナイト構造を持つ $\text{Cu}_3\text{As}(\text{S},\text{Se})_4$ や、結晶構造が硫砒銅鉍構造となる $\text{Cu}_3\text{P}(\text{S},\text{Se})_4$ など、ニクトゲン原子の変化によって、結晶構造やバンド構造が変化することが知られている[2]。本研究では Cu_3SbSe_4 関連物質について、仮想結晶構造を含めた計算を行うことによって、元素置換などによる熱電性能向上の可能性を探索することを目的とした。

図 1 に Cu_3PnS_4 ($\text{Pn}=\text{P},\text{As},\text{Sb}$) の結果を載せた。同じファマチナイト構造である $\text{Pn}=\text{Sb},\text{As}$ のを比較すると、フェルミエネルギー直下の X 点におけるバンド構造に変化が見え、熱電性能に大きな影響を及ぼす縮重度が物質置換によって変化する可能性を示している。本発表では、計算方法の詳細や、仮想物質を含めた計算結果について報告し・議論を行う予定である。

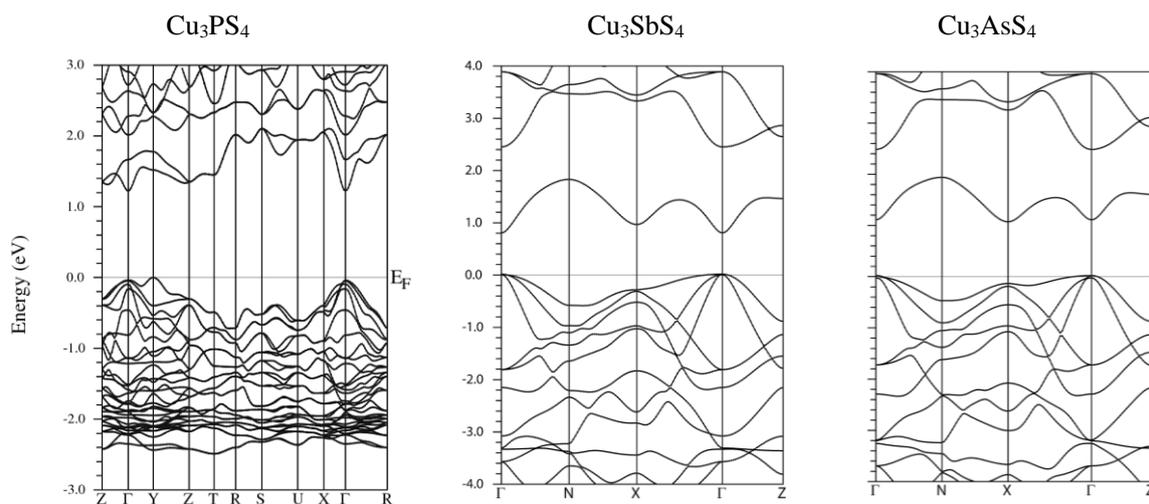


図 1. Cu_3PnS_4 のバンド構造、 $\text{Pn}=\text{P}$ が硫砒銅鉍構造、 $\text{Pn}=\text{Sb},\text{As}$ はファマチナイト構造となる。

[1] E. J. Skoug et al., Appl. Phys. Lett. **98**, 261911 (2011).

[2] D. T. Do, and S.D. Mahanti, J. Phys. Chem. Solids **75**, 477 (2014).