

遷移金属リン化物  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$  の電子輸送特性の解析Analysis of electron transport properties of transition metal phosphide  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$ 

北陸先端大, °宮田 全展, 福嶋 匠, 小矢野 幹夫

JAIST, °Masanobu Miyata, Takumi Fukushima, and Mikio Koyano

E-mail: m-miyata@jaist.ac.jp

我々は第一原理計算を用いた材料デザインにより軽元素で構成される環境調和型新規熱電材料の創製を目的として材料の構造安定性・電子輸送特性を考慮した材料探索を行い、モデル物質として  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$  に注目した。

Figure 1 に実験で測定した  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$  の熱電能  $S$  の温度依存性を示す。黒丸は PPMS, 白抜きは RZ2001i で測定した。 $S$  は大きな正の値を示し温度上昇に伴い増大し、570 K 付近から減少する。この減少は両極性拡散によるものと考えられる。

本研究では、 $\text{NiSi}_3\text{P}_4$  の詳細な電子輸送特性を調べるため以下に示す式(1)を用い、単一の放物バンドを仮定し、キャリアの散乱パラメータ  $\gamma$  を用いてキャリアの緩和時間  $\tau$  がエネルギー  $\varepsilon$  のべき乗  $\varepsilon^\gamma$  の依存性があるとして  $S$  の温度依存性を計算した。

$$S = \frac{k_B}{q} \left\{ \frac{\left(\gamma + \frac{5}{2}\right) F_{\gamma+\frac{3}{2}} - \eta_F}{\left(\gamma + \frac{3}{2}\right) F_{\gamma+\frac{1}{2}}} \right\} \quad (1)$$

$$F_\gamma = \int_0^\infty \frac{\eta^\gamma}{\exp(\eta - \eta_F) + 1} d\eta, \eta = \frac{\varepsilon}{k_B T}$$

$q$  はキャリアの電荷量,  $k_B$  はボルツマン定数,  $\eta_F$  はフェルミエネルギー  $E_F$  を  $k_B T$  で割った量である。イオン化不純物散乱の場合は  $\gamma = 3/2$ , 音響フォノン散乱の場合は  $\gamma = -1/2$  となる。

Figure 2 に  $\tau$  を一定として  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$  の  $E$ - $k$  関係から BoltzTraP を用いて計算した熱電能  $S_{\text{Boltz}}$ , 式(1)からイオン化不純物散乱を仮定して計算した熱電能  $S_{\text{ion}}$ , および音響フォノン散乱を仮定して計算した熱電能  $S_{\text{ap}}$  の温度依存性を示す。比較的  $S$  の実験値をよく再現するといわれる  $S_{\text{Boltz}}$  はあまり実験値と一致しない。一般に  $S$  は比較的  $\tau$  に敏感ではないとされるが、実験で作製した  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$  は化学ポテンシャル  $\mu$  近傍で  $\tau$  のエネルギー依存性があり、キャリアの散乱が実験値  $S$  に寄与していると考えられる。 $S_{\text{ion}}$ ,  $S_{\text{ap}}$  は  $S_{\text{Boltz}}$  とは異なる温度依存性を示し、 $S_{\text{ion}}$  は比較的実験値をよく再現することから、式(1)を用いて現象論的に実験値  $S$  の温度依存性を解析することが可能である。

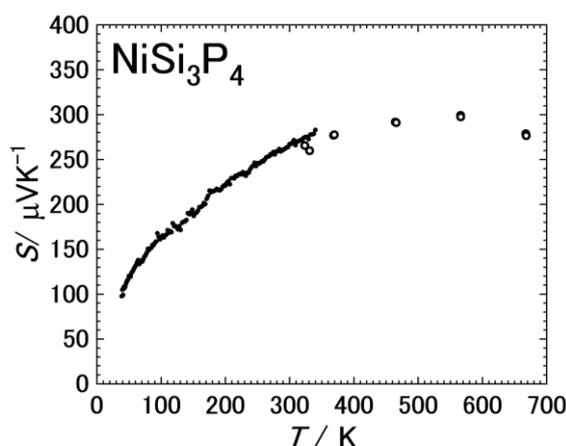


Fig. 1 Temperature dependence of thermopower  $S$  for  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$

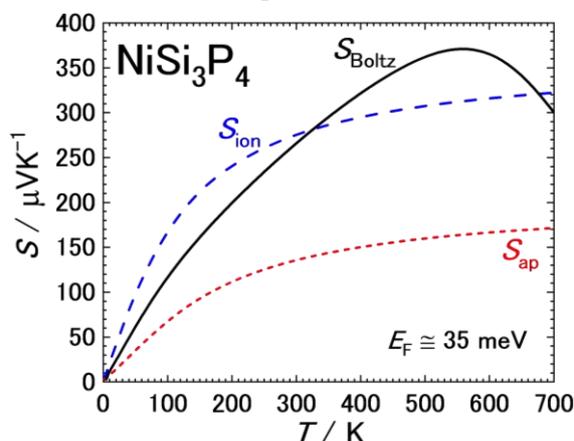


Fig. 2 Temperature dependence of theoretical thermopower  $S_{\text{Boltz}}$ ,  $S_{\text{ion}}$ , and  $S_{\text{ap}}$  of  $\text{NiSi}_3\text{P}_4$ .