

有機無機ペロブスカイトの安定構造探索と熱電特性

Ground-state search and their thermoelectric properties of perovskite iodide

○山本 久美子¹、山崎 純¹、成田昂宇¹、飯久保 智^{1,2}(九工大生命体¹、JST-CREST²)

°Kumiko Yamamoto¹, Jun Yamasaki¹, Gou Narita¹, and Satoshi Iikubo^{1,2}

(Kyushu Inst. Tech.¹, JST-CREST²) E-mail: iikubo@life.kyutech.ac.jp

有機無機ペロブスカイト化合物は太陽電池材料として活発な研究が行われているが、近年、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ の熱電性能指数 $ZT \sim 0.2$ ^[1] が報告され、高い電気伝導度と有機分子による熱伝導度の低減により、熱電材料としての利用も期待できることがわかってきた。実用可能な材料となるためにはさらなる ZT の向上が必要であるが、その一つの方法として不純物ドーピングによる電子構造の制御に着目した。さまざまな不純物元素が実際にドーピング可能であるかは、実験による検証によるところが多い。これまで本研究グループでは計算科学的手法を用いて、ペロブスカイト化合物における部分置換の可能性について調査を行ってきた^[2]。第一原理計算にクラスター展開法を組み合わせることで広範囲の組成において部分置換の可能性を評価することができる。本研究では、これらの手法にさらに熱電特性評価を組み合わせることで、新たな熱電材料の設計手法構築を試みた。

具体的な計算対象として、 ABX_3 のペロブスカイト構造を取り上げた。A サイトには $\text{CH}_3\text{NH}_3(\text{MA})$ と Cs、B サイトには Sn を基本構造とし、Ge や Pb、Bi 等で部分置換を行った。X サイトは I とした。まずペロブスカイト構造の規則構造を複数作成し、第一原理計算により生成エネルギーを評価した。その値をよく再現する有効相互作用エネルギーをクラスター展開法に決定し、部分置換系の安定構造を探索した。Fig.1 にはその一例として、 $\text{APb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{I}_3$ の計算結果を示す。図中のマークはそれぞれ第一原理計算から求めた生成エネルギーを示し、エネルギー値が負の値になるほど安定な構造であることを示している。また、破線は Ground State を示している。B サイトが Pb と Sn の場合は、A サイトが Cs の場合にのみ構造が安定化していることがわかる。これらの安定構造について、Boltztrap により各種輸送特性量を算出し、熱電性能指数を評価した。発表では本手法で得られた安定構造の熱電特性の結果と、安定構造と熱電特性の相関について議論する。

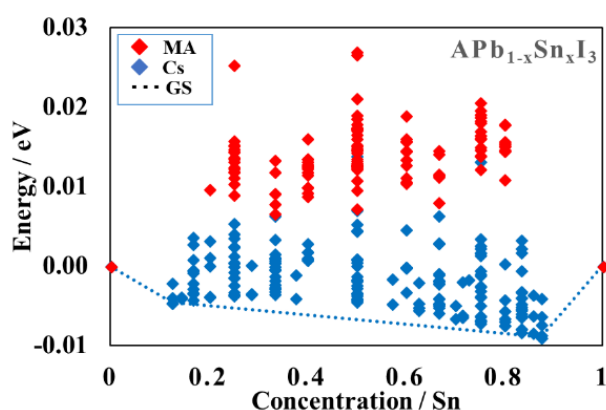


Fig.1 $\text{APb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{I}_3$ の生成エネルギー

[1] X. Mettan *et al.*, J. Phys. Chem. C. 2015 119, 11506 – 11510

[2] K. Yamamoto *et al.*, J. Phys. Chem. C. 2017, 121, 27797–27804